

Philips Technisch Tijdschrift

BEHANDELEND TECHNISCHE VRAAGSTUKKEN

SAMENHANGENDE MET DE PRODUKTEN, WERKWIJZEN EN ONDERZOEKINGEN
VAN DE N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN



Het Philips' Natuurkundig Laboratorium is aan het verhuizen. In Waalre, in de nabijheid van Eindhoven, verrijst een nieuw gebouwencomplex dat de te nauwe behuizing zal vervangen waarin het, sinds de oprichting ongeveer 50 jaar geleden gestadig groeiende, Laboratorium tot dusver was ondergebracht.

Ter gelegenheid van de ingebruikneming van de eerste grote sectie van het nieuwe complex is op 26/27 september 1963 een Symposium gehouden, waartoe een groot aantal gasten, als vertegenwoordigers van research-instellingen van vele landen, waren uitgenodigd. Het programma van dit Symposium, dat geheel werd verzorgd door leden van ons

Laboratorium, omvatte behalve drie hoofdvoordrachten en enkele algemene demonstraties nog ongeveer 50 meer gespecialiseerde korte voordrachten.

Het voor U liggende nummer van ons Tijdschrift is geheel gewijd aan deze belangrijke gebeurtenissen in de geschiedenis van ons Laboratorium. Het nummer bevat de inleidende toespraak voor het Symposium, gehouden door prof. Casimir, die de leiding heeft van alle research-activiteiten van het Philips concern; voorts de volledige tekst van de hoofdvoordrachten alsmede samenvattingen van de demonstraties en korte voordrachten; ten slotte een artikel over de nieuwe laboratoriumgebouwen — waarvan er een op bovenstaande foto te zien is.

ALGEMENE INLEIDING TOT HET SYMPOSIUM IN HET NATUURKUNDIG LABORATORIUM OP 26/27 SEPTEMBER 1963

door H. B. G. CASIMIR *).

De ontwikkeling van wetenschap en techniek volgt niet een enkel eenvoudig plan maar verloopt vaak met plotselinge en soms verrassende wendingen. Nieuwe ideeën kunnen het resultaat zijn van jarenlange moeizame arbeid of zij kunnen heel onverwachts ontspringen. Ze kunnen onmiddellijk tot een grootscheepse activiteit leiden of ze kunnen gedurende een kortere of langere tijd verborgen blijven wachten, tot de techniek er rijp voor wordt of tot zij op ander gebied van pas blijken te komen. Soms kan een enkele groep of zelfs een enkele persoon een geheel nieuw gebied van onderzoek openen; vaker wordt verwant werk in verscheidene centra gedaan. Op het eerste gezicht geheel onafhankelijke gedachtegangen kunnen ineens in verband met elkaar worden gebracht en hun combinatie kan een rijke oogst opleveren; wat eerst een onbelangrijke zijweg leek, kan dan weleens de hoofdweg voor het verdere werk worden. In de Philips laboratoria zijn wij ons van dit alles wel bewust; werkende in een klein land maar voor een onderneming waarvan de activiteit zich uitstrekt over de gehele wereld, beseffen wij misschien nog sterker dan sommige van onze collega's elders hoe zeer ons werk met dat van anderen verweven is. Vreugde en trots heeft ons soms vervuld wanneer wij het voorrecht hadden als eerste een nieuw pad te betreden, zoals in het geval van de ferrieten, of wanneer wij als eerste een haast vergeten idee tot nieuw leven wisten te wekken, zoals in het geval van de heteluchtmotor. Het verheugde ons echter evenzeer wanneer we constateerden dat we niet meer alleen waren en dat anderen onze technieken overgenomen hadden. Meestal beweegt ons werk zich op een veld van onderzoek dat in vele verschillende instituten wordt ontgonnen; in vele gevallen is het ons daarbij gelukt nuttige bijdragen te leveren, en we hebben plezier gehad in de sportieve wedstrijd tussen de laboratoria. Zelfs in die gevallen waar we niet veel eigen resultaten konden bijdragen en waar we in hoofdzaak moesten leren en nadoen, konden we toch de bekwaamheid en vindingrijkheid van anderen bewonderen. En natuurlijk zijn wij ons altijd bewust geweest van de dank die wij de grote natuurvorsers aan academische instellingen verschuldigd zijn. Hoewel misschien op sommige gebieden de techniek voor is geweest bij de fundamentele wetenschap, is dit slechts zelden het geval geweest in de elektronentechniek: hiervoor zijn de fundamentele ideeën in de regel enige tientallen jaren vóór hun toepassing in de industrie geformuleerd.

Laat ik dit met enkele voorbeelden staven. De fundamentele experimenten over microgolven zijn door Hertz in 1888 gedaan, en trilhouten kenden de theoretici tegen het eind van die eeuw; de techniek van de microgolven waarin deze ideeën zijn belichaamd, werd eerst in de jaren veertig van deze eeuw ontwikkeld. De gedachte van een optisch éénrichting-systeem, gebaseerd op de Faraday-rotatie, is door Lord Rayleigh in 1885 geopperd; de eerste gyrator voor microgolven, die in wezen de realisatie van die gedachte in een ander spectraal gebied voorstelde, kondigde Hogan in 1952 aan; optische éénrichting-systemen gebaseerd op de Faraday-rotatie beginnen nu geleidelijk ingang te vinden bij de optische masers. De relativistische bewegingsvergelijkingen van het elektron zijn door Lorentz en Einstein aan het begin van deze eeuw geformuleerd; ze vonden in de techniek vrijwel geen toepassing tot de komst van het bètatron, het synchrotron en de lineaire versneller. Het begrip gestimuleerde emissie is door Einstein in 1917 ingevoerd; de eerste maser maakte Townes in 1955. Zelfs bij de halfgeleiders liggen er twee decennia tussen de invoering van het idee van een positief gat en de ontdekking van de eindige levensduur van gaten en de uitvinding van de transistor. Nooit is er één Prometheus en één brandende fakkel geweest, maar telkens opnieuw hebben de grote mannen der wetenschap vonken van het heilige vuur aan de goden weten te ontworstelen, vonken die door de zorg en de onvermoeide arbeid van vele anderen werden aangewakkerd tot een stralende bron van licht.

Heden echter, op deze bijzondere dag, verheugen wij ons zo zeer hier zo vele van onze goede vrienden te kunnen ontvangen, en zijn wij zo blij, als een kind met een nieuw stuk speelgoed, een gelegenheid te hebben ons mooie nieuwe laboratorium te laten zien en iets te kunnen vertellen van wat we aan het doen zijn, dat wij wat minder dan gewoonlijk de nadruk zullen leggen op het verband met het werk van anderen: U zult niet anders verwachten dan dat we over ons werk en over onze resultaten spreken en U zult ons, naar wij hopen, vergeven als we deze resultaten zo voorleggen als wij ze zien en opvatten. De bloemlezing die wij U aanbieden, kan niet anders dan onvolledig zijn. Ik hoop dat ze voldoende zal zijn om U te tonen dat wij ons deel van de moeizame arbeid hebben geleverd om het licht te doen branden. Misschien zijn wij soms ook in staat geweest er zelf op uit te trekken en enkele vonken van het grote vuur te veroveren? Het antwoord op die vraag moeten wij aan Uw oordeel overlaten.

*) Raad van Bestuur, N.V. Philips' Gloeilampenfabrieken.

ENIGE HOOFDLIJNEN VAN 50 JAREN NATUURKUNDIG ONDERZOEK BIJ PHILIPS

door H. B. G. CASIMIR.

001.891.53

Het onderzoek van gasontladingen kon reeds terugzien op een roemrijk verleden, toen Holst en zijn medewerkers dit als een van hun eerste hoofdonderwerpen aanpakten ¹⁾). Het onderzoek had ertoe geleid dat J. J. Thomson het elektron had ontdekt — of, zoals wij Nederlanders liever zeggen, het bestaan ervan experimenteel had aangetoond — en dat W. C. Röntgen de naar hem genoemde stralen had gevonden. Fig. 1 is een afbeelding van

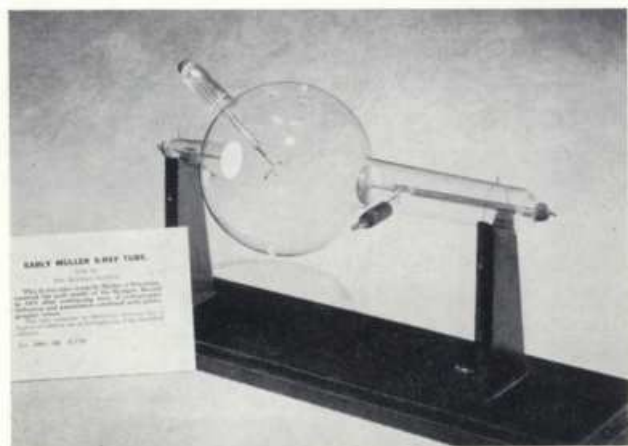


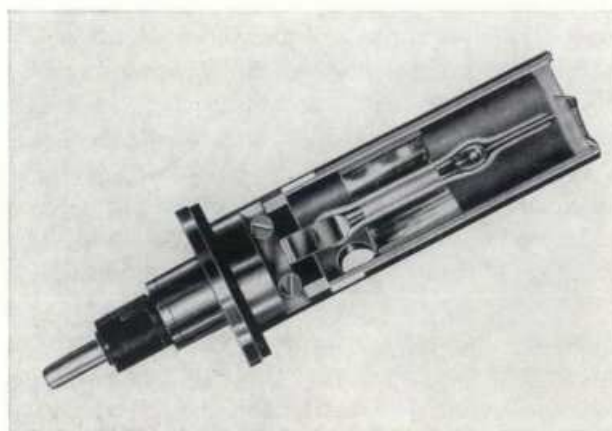
Fig. 1. Een der eerste in de handel gebrachte röntgenbuizen, gefabriceerd door de firma C. H. F. Müller in 1901.

een der eerste in de handel gebrachte röntgenbuizen, gefabriceerd door de firma C. H. F. Müller, een firma die naderhand een waardevol lid van de Philips familie is geworden. De theorie van Bohr gaf een dieper inzicht in de gasontlading en schiep daardoor betere mogelijkheden voor technische toepassing. Mij ontbreekt de tijd om bij de wetenschappelijke uitkomsten van dat vroege werk in ons Natuurkundig Laboratorium stil te staan, doch ik vermeld wel

*) De aangehaalde literatuur vindt men in een lijst aan het einde van het artikel.

Fig. 2. a) Een moderne natriumlamp met bijzonder hoog rendement, dat verkregen is o.a. door een infrarood-reflecterend laagje tinoxide (aangeduid door de streeplijn). b) Een met watergekoelde superhagedruk-kwiklamp van 1000 W (SP 1000 W). Ter verbreding van het lichtgevende oppervlak is het ontladingsbuisje gemonteerd in een metalen reflector.

even de natriumlamp ²⁾ en de superhagedruk-kwiklamp ³⁾ als fraaie technische resultaten (fig. 2a en b). We zijn er onlangs in geslaagd de energiebalans van een natriumlamp nog te verbeteren door op de wand een laagje geschikt behandeld tinoxide aan te brengen, dat doorzichtig is voor zichtbaar licht doch een sterke reflexie blijkt te bezitten in het infrarood ⁴⁾. Aan het einde der jaren '30 was de belangstelling voor de fundamentele aspecten van de gasontlading wat getaand, maar op het zich snel uitbreidende terrein van de experimentele kernfysica werd een dankbaar gebruik gemaakt van ionenbronnen en geigertelbuizen. Ook heden is de geigertelbuis nog geenszins verdrongen door de fotomultiplicator met scintillatorkristal of door halfgeleider-tellers. Juist onlangs nog zijn de stabiliteit en de reproduceerbaarheid van geigertelbuizen aanzienlijk verbeterd ⁵⁾. U ziet hier een deel van het assortiment dat thans in onze fabrieken vervaardigd wordt (fig. 3). Dit is in hoofdzaak ontwikkeld door een kleine werkgroep van ons laboratorium in het Amsterdamse Cyclotroninstituut. Leuk werk, dat bouwen van cyclotrons; ons nieuwste ontwerp van een isochroon cyclotron, waarop we nogal trots zijn, is een van de onderwerpen van dit Symposium ⁶⁾. Ik wil hier ook de complete telapparaturen vermelden, voornamelijk omdat de indicatiebuis die daarin veelal wordt gebruikt, een buis met een lintvormige elektronenbundel in tien stabiele standen ⁷⁾, mij de



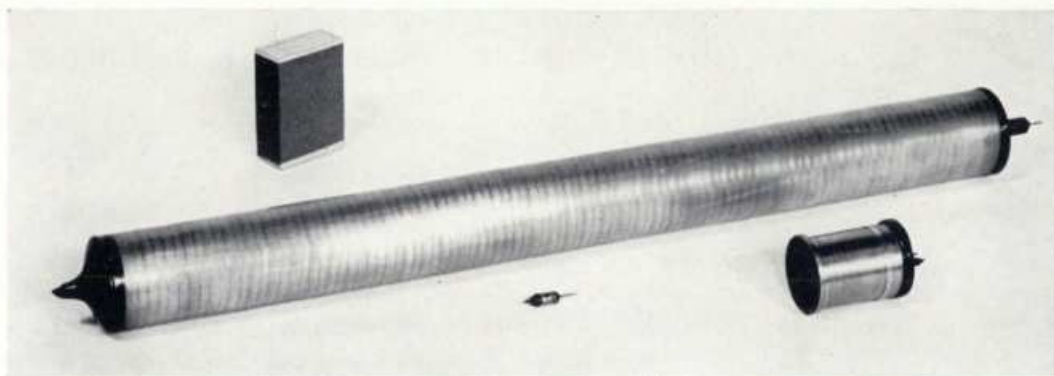


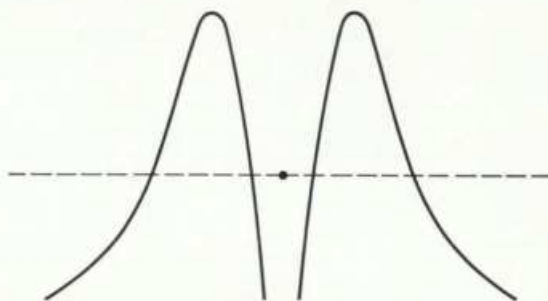
Fig. 3. Drie geigertelbuizen van verschillende grootte.

gelegenheid geeft met enkele woorden dr. J. L. H. Jonker te gedenken, in wiens groep deze buis werd ontwikkeld. Velen onder U zullen hem gekend hebben, en ons laboratorium is hem dank verschuldigd voor het voortreffelijke team en de mooie traditie welke hij in het leven riep. Hij verliet ons om zich in dienst te stellen van de nieuwe Technische Hogeschool hier in Eindhoven, en tot aan zijn al te vroege dood deze zomer leidde hij daar met veel elan de Afdeling Elektrotechniek. De genoemde buis, het type EIT, is de enige overlevende van een ganse groep van schakelbuizen en buizen voor logischschakelingen, die door de komst van de transistor van het toneel werden verdrongen nog voor ze goed en wel uit het ontwikkelingsstadium waren gekomen.

Terug naar de gasontladingen. Met radar kwamen zendontvangschakelaars en met waterstof gevulde thyatronen, en op het ogenblik zien we een enorme bedrijvigheid in verband met gaslasers, kernfusie als energiebron, directe omzetting van warmte in elektrische energie, microgolfapparatuur, enz., terwijl de oudere onderwerpen van studie nog geenszins uitgeput zijn. Voorts zijn de astronomen, die zo vaak in hun denken al verder zijn dan wij meer aardgebonden stervelingen, aan een intensieve studie der magnetohydrodynamica begonnen. Het is vandaag niet meer moeilijk een jonge man ervan te overtuigen dat gasontladingen een fascinerend onderwerp zijn. Natuurlijk moet je het nu plasmafysica noemen, maar als vader van vier dochters moet ik wel eens ergere concessies aan de mode doen. We werken op het ogenblik niet aan ontledingen met zeer grote stromen, doch we kunnen U iets laten zien van ons werk aan allerlei verschijnselen en apparatuur, zoals afgesmolten neutronengeneratoren⁸⁾, wisselwerking van deeltjesbundels met een plasma⁹⁾, en optische lasers¹⁰⁾.

Een interessante trek van het laseronderzoek is dat het gelegenheid biedt voor vernuftige optische opstellingen; U zult enkele voorbeelden hiervan zien. Lasermodi doen me altijd denken aan cascadegene-

ratoren. Waarom? Omdat ze pseudostationaire trillingswijzen zijn, in die zin dat de golfbeweging niet alleen uitsterft ten gevolge van energiedissipatie, doch ook door het weglekken van golven naar de ruimte. Dergelijke situaties zijn altijd lastig om wiskundig te behandelen. Het beroemdste voorbeeld is wel Gamow's theorie van de α -radioactiviteit (fig. 4). Een α -deeltje bevindt zich binnen een potentiaalput doch kan door de barrière heen „tunnelen”.

Fig. 4. Symbolische voorstelling van een α -deeltje dat volgens Gamow door een potentiaalbarrière heen „tunnelt”.

Zelfs in dit simpele geval was het moeilijk tot een bevredigende mathematische behandeling te komen. U zult zich herinneren hoe het denkbeeld van het tunnelen door een potentiaalbarrière Cockcroft en Walton er toe bracht hun experimenten voort te zetten. Spoedig daarna begonnen wij hoogspanningsgeneratoren op industriële schaal te vervaardigen. Fig. 5 toont U de eerste generator die we in Cambridge installeerden en die, naar ik meen, zeer behoorlijk heeft voldaan¹¹⁾.

Een van onze grote mannen op het gebied van de gasontladingen was wijlen dr. F. M. Penning, en een van zijn bijdragen was de in 1936 uitgevonden Penning-manometer, bij de ingewijden bekend als „PIG”¹²⁾ (Penning — ofwel Philips — „ionization gauge”). Hier ziet U een van de eerste modellen (fig. 6). Later werd de configuratie gewijzigd, maar het grondbeginsel bleef hetzelfde, nl. het gebruik van gekruiste elektrische en magnetische velden, waarin

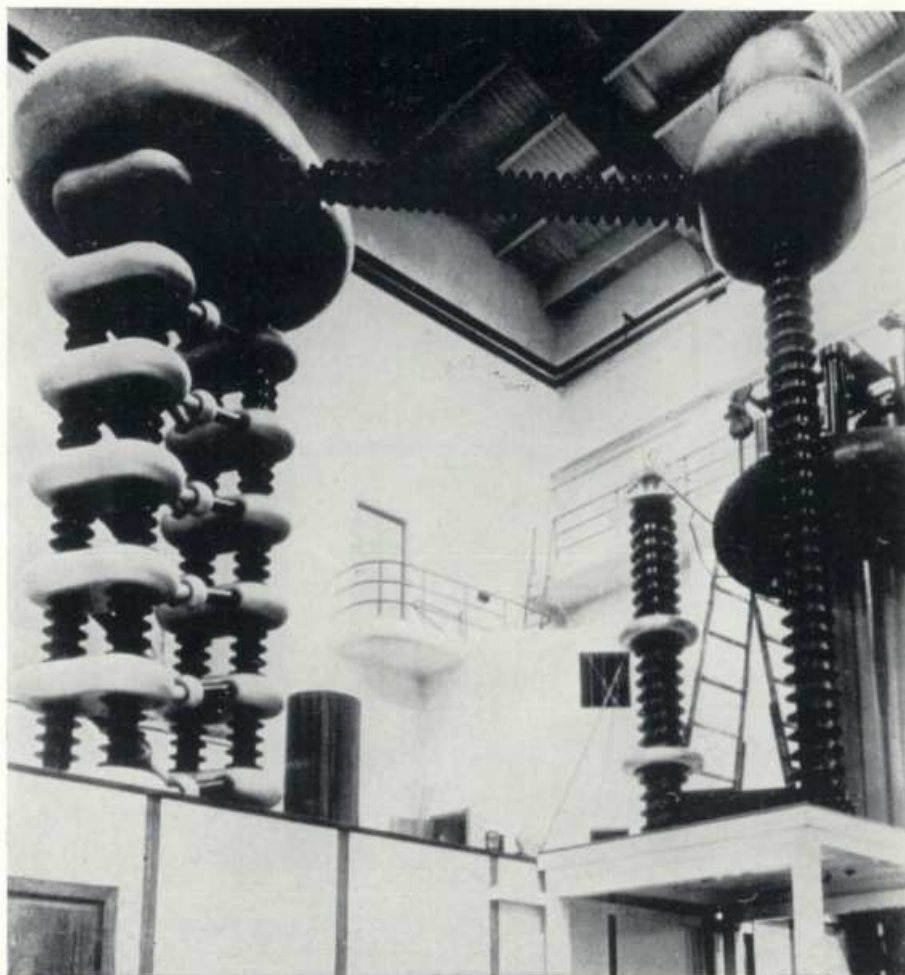


Fig. 5. De eerste bij Philips gebouwde cascadegenerator (1 MeV), die in 1937 in Cambridge werd opgesteld.

de elektronen vanuit de katode slechts na een aantal botsingen de anode kunnen bereiken. Penning legde er de nadruk op dat het toestel gebruikt kon worden als manometer — als zodanig vond het spoedig op vele plaatsen in onze eigen fabrieken toepassing —, als ionenbron — hij construeerde de eerste afgesmolten neutronenbuis ¹³⁾ —, en als pomp. Ik herinner me nog levendig de voordracht die hij in 1936 voor de Nederlandse Natuur-

kundige Vereniging in Amsterdam hield. Voor zijn demonstraties was slechts een nogal gebrekkige pomp beschikbaar, maar hij draaide een kraantje dicht, waarop de manometer voor het pompen zorgde. Ik was toen een jong theoreticus, grootgebracht in quantummechanica en dus niet onbekend met het denkbeeld dat een meting de toestand beïnvloedt, maar dat deze de toestand daadwerkelijk kon verbeteren, was bepaald een verrassing voor me. Tegenwoordig worden „PIG's” alom gebruikt. Een van onze concurrenten is zo vriendelijk geweest de voordelen ervan in een reclamefolder op te sommen. In een ietwat zelfzuchtiger stemming zouden we het kunnen betreuren dat de geldigheidsduur van de octrooien verstreken is.

In de jaren '30 begon ons laboratorium het ferromagnetisme te bestuderen en dit is tot op heden een van onze voornaamste onderwerpen van onderzoek gebleven. Ik kan in een tijdsbestek van ongeveer een kwartier onmogelijk recht doen wedervaren aan het werk van Snoek ¹⁴⁾ en vele anderen, maar dat is misschien niet erg, aangezien vele van hun resultaten

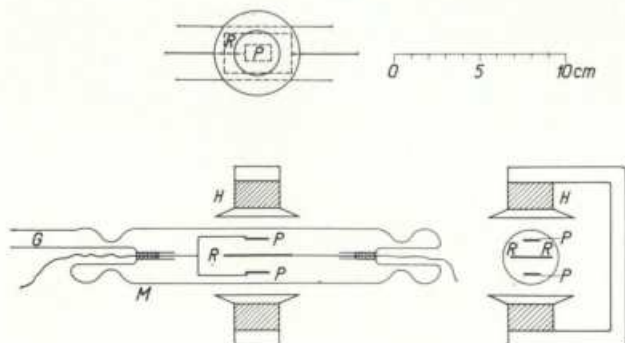


Fig. 6. Configuratie van een der oudste modellen van de Penning-manometer; gereproduceerd uit Penning's eerste publikatie over dit onderwerp.

gemeengoed geworden zijn. De tabel I kan misschien helpen de huidige situatie te overzien. We kunnen

Tabel I. Magnetische materialen.

Hoofdeigenschappen en toepassing	Materialen	
	metalen	oxydes
permanent	„Ticonal”	hexagonale ferrieten (ferroxdure)
semi-permanent geheugens	dunne films	ferrieten met rechthoekige hysteresislus
magnetische registratie	dun draad	ijzeroxyde-poeders (band)
zacht, lineair transformatoren, zelfinducties, enz.	siliciumijzer permalloy, enz.	kubische ferrieten
zacht, niet-lineair magnetische versterkers spanningsregelaars	siliciumijzer permalloy, enz.	kubische ferrieten
microgolf-toepassingen		kubische ferrieten hexagonale ferrieten (ferroxdure, ferroxplana) granaten
magnetostrictie	nikkelijzer	speciale ferrieten

twee soorten materialen onderscheiden: metalen en legeringen enerzijds, halfisolerende oxydes anderzijds. Dit onderscheid loopt meestal parallel met een meer fundamenteel onderscheid, nl. tussen ferromagnetische en ferrimagnetische materialen. Ik kom hier later op terug. Elektrotechnisch bezien, kunnen we een indeling maken naar toepassingsgebieden: permanente magneten worden gebruikt om magnetische velden op te wekken; magnetische materialen die dienen voor het opslaan van informatie in de vorm van een magnetisatie heb ik als semi-permanent betiteld; zachte magnetische materialen met lineair gedrag vinden toepassing in transformatoren, filterspoelen, enz.; ten slotte zachte magnetische materialen met niet-lineair gedrag (dit kunnen dezelfde materialen zijn, gebruikt bij hogere veldsterkten), die worden toegepast in magnetische versterkers, spanningsregelaars, modulatoren en oscillatoren met variabele frequentie. In het gebied der microgolven zijn richtingsisolatoren van bijzondere betekenis, en dan niet te vergeten de parametrische versterker van het Suhl-type. De volgende voorbeelden geven U wellicht enig idee van ons werk op al deze gebieden. „Ticonal” 5¹⁵): dit materiaal werd

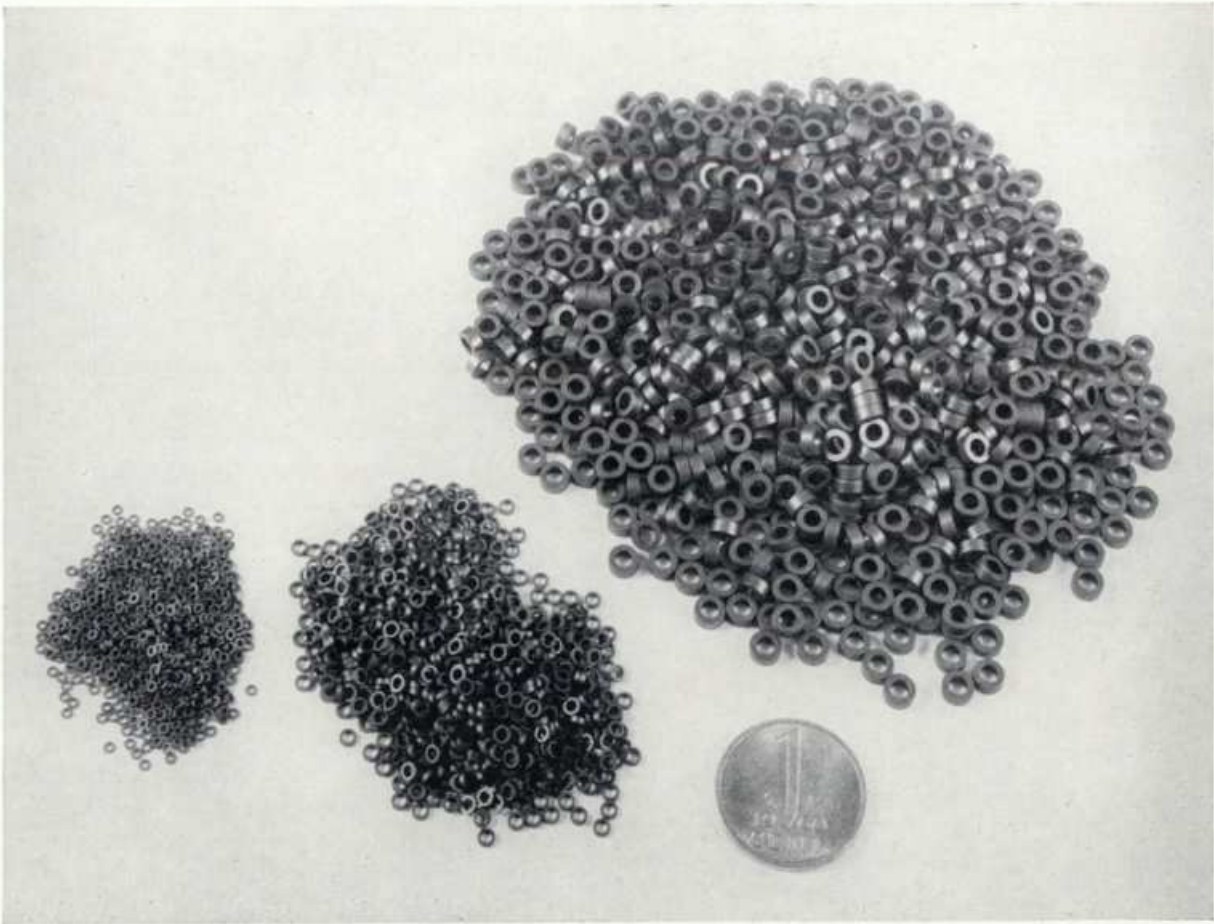


Fig. 7. Ringetjes van een ferriet met rechthoekige hysteresislus, voor magnetische geheugens. Elk stapeltje bevat 1000 ringetjes.

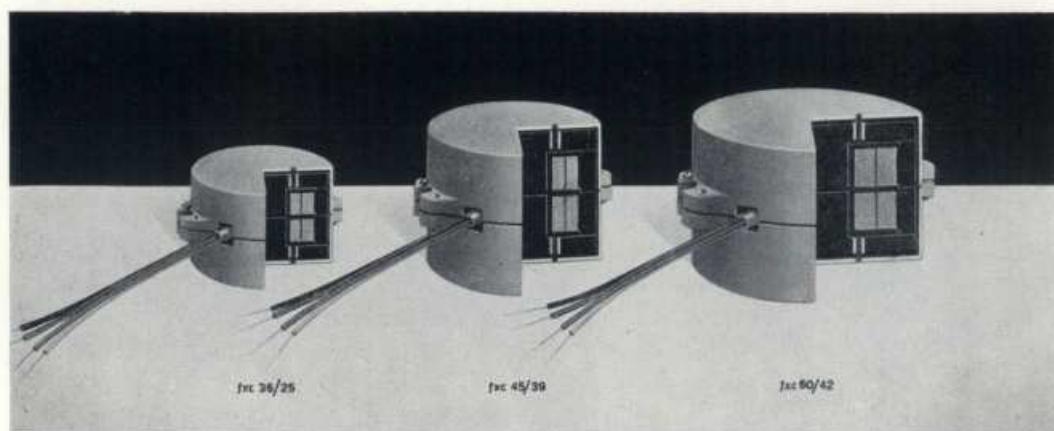


Fig. 8. Drie Pupin-spoelen. Van elke spoel is een gedeelte uitgezaagd om de wikkelingen en de ferroxcubekern (zwart) te laten zien.

in 1937 uitgebracht, zijn hoge waarde van $(BH)_{\max} = 5 \times 10^6$ gauss oersted was verkregen door afkoeling in een magnetisch veld. „Ticonal” 11¹⁶): een soortgelijk materiaal, maar nu monokristallijn, en afgekoeld in een magnetisch veld evenwijdig met één van de kubische assen. Ferroxidure¹⁷): chemisch is dit een hexa-ferriet, $\text{BaO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$, het heeft een hexagonale kristalstructuur en een zeer grote kristalanisotropie, met de hexagonale as als voorkeursrichting voor de magnetisatie; de $(BH)_{\max}$ is slechts $3,5 \times 10^6$, maar dat getal zegt niet alles. Deze materialen en de fysisch-chemische grondslagen van hun eigenschappen zullen uitvoeriger door dr. Vink worden besproken. Elk van deze drie stapeltjes (fig. 7) bevat duizend ringetjes van een ferriet met rechthoekige hysteresislus (om precies te zijn, betreft het een Mn-Mg-Zn-ferriet voor de grootste ringen en een Cu-Mn-ferriet voor de beide kleinere types). Elk

stapeltje bevat dus genoeg materiaal voor het opslaan van 1000 bits informatie. Ferrietkernen worden in vele vormen en afmetingen gebruikt. Een van hun vroegste toepassingen vindt men in Pupin-spoelen (fig. 8), die de oude spoelen met een kern van sterk anisotroop, in één richting magnetisch zacht nikkel-ijzerband vrijwel hebben verdrongen. Een spectaculaire toepassing vinden ferrietkernen in grote deeltjesversnellers, zoals in Brookhaven en bij de CERN: ik toon U hier een van de ringen die we voor dit doel vervaardigd hebben (vgl. fig. 9). Ten slotte heb ik in mijn monsterkoffertje nog een paar richtingsisolatoren voor millimetergolven (fig. 10) en een ultrasone triller van een soort dat meer en meer toegepast wordt voor ultrasoon reinigen (fig. 11).

Ik wil nu enige van de meer fundamenteel-fysische aspecten met U bespreken. Ik heb reeds het verschil tussen ferromagnetisme en ferrimagnetisme genoemd.



Fig. 9. Ferrietringen voor de 12 versnellerstations van het 33-GeV-protonsynchrotron te Brookhaven. (Reproductie met toestemming van Brookhaven National Laboratory.)

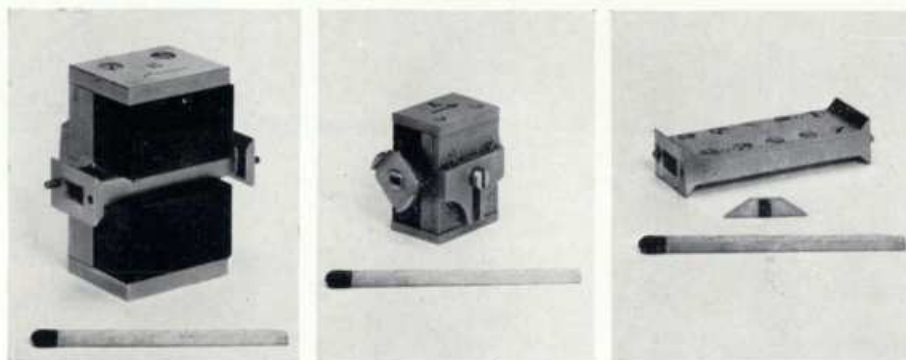


Fig. 10. Richtingsisolatoren voor 8-mm-golven (links en rechts) en voor 4-mm-golven (in het midden).

Laat ik even de grondgedachten van het ferrimagnetisme, die we te danken hebben aan Néel te Grenoble, in de herinnering roepen.

In een ferromagnetisch materiaal tracht de plaatsruilwisselwerking tussen twee naburige spins deze evenwijdig met elkaar te oriënteren; bij het ferrimagnetisme heeft de wisselwerking het tegengestelde teken. Zijn er echter voor de magnetische ionen in

het kristalrooster verschillende plaatsen beschikbaar, dan kan uit deze wisselwerking toch een magnetisch moment resulteren dat niet nul is. In het eenvoudigste geval zijn er twee soorten roosterplaatsen; we noemen deze *A*- en *B*-plaatsen. Het is nu zeer wel mogelijk dat de wisselwerking tussen *A*- en *B*-spins groter is dan die tussen *B* en *B* en die tussen *A* en *A*. De toestand van kleinste energie is dan die waarbij

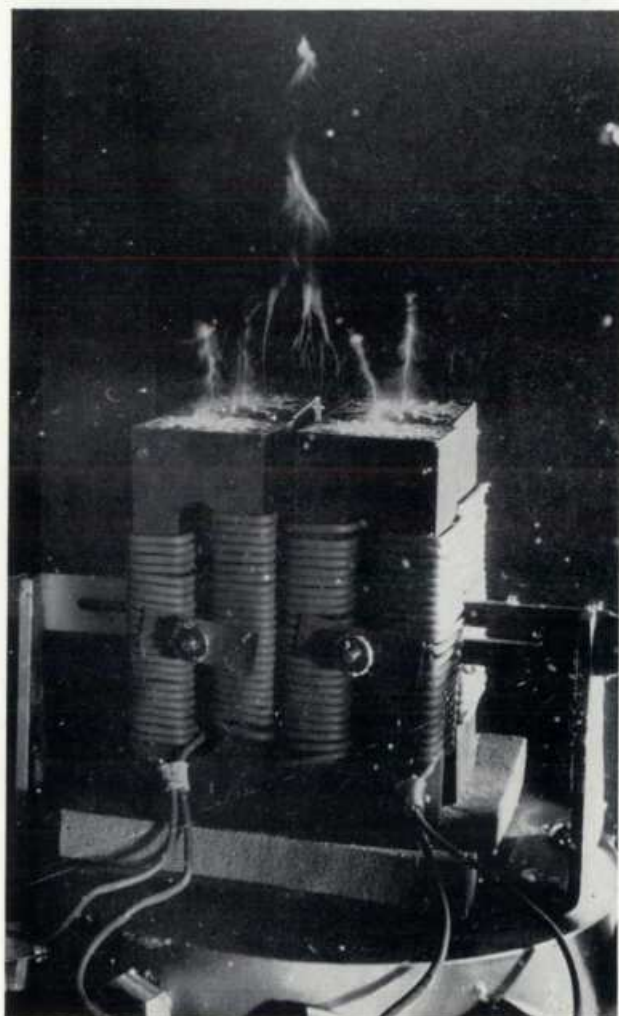


Fig. 11. Ferriet-triller voor het ultrasoon reinigen, opgenomen tijdens de werking in water.

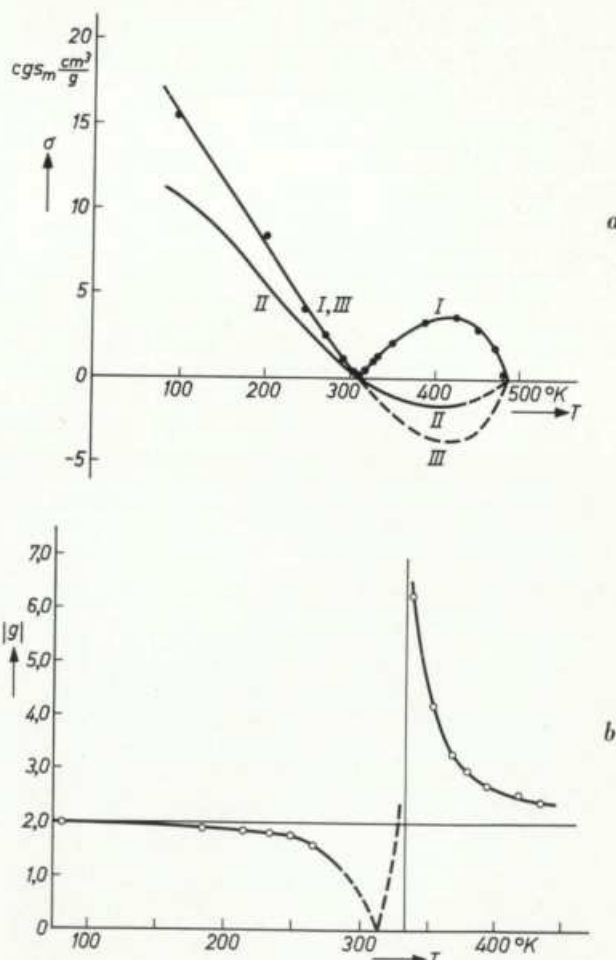
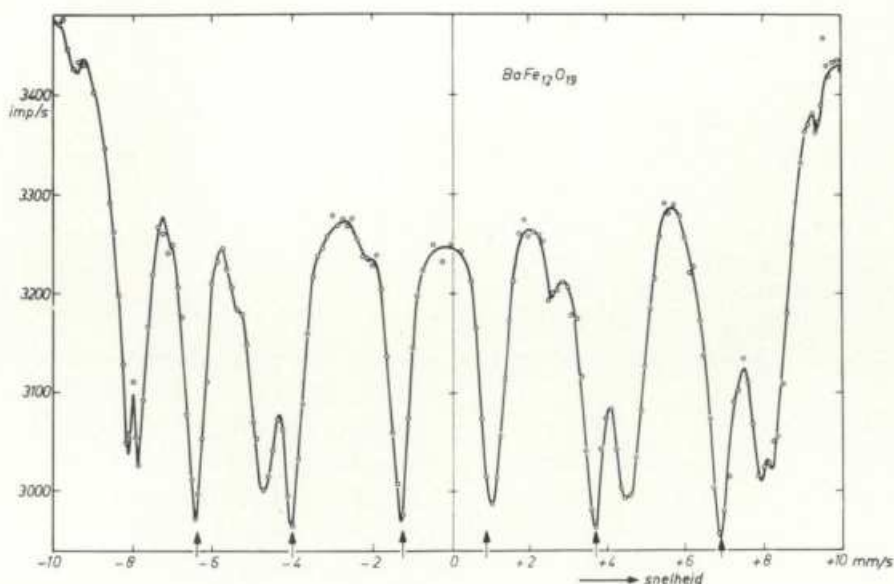


Fig. 12. a) Temperatuurverloop van de verzadigingsmagnetisatie van $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.25}\text{Cr}_{1.25}\text{O}_4$. Men ziet dat bij een bepaalde temperatuur de magnetisatie van teken omkeert. b) Het eigenaardige temperatuurverloop van de *g*-factor van dezelfde stof.



alle A -spins antiparallel zijn met de B -spins. Voor het totale magnetische moment kunnen we dan schrijven $M = M_A - M_B$. Het verband tussen deze hypothetische A - en B -plaatsen en werkelijke roosterplaatsen alsmede de verdeling van de verschillende magnetische ionen over die plaatsen zal worden besproken in de voordracht van dr. Vink, maar een verrassende fysische consequentie van deze theorie ziet men in de volgende figuren (fig. 12a en b). Gorter en Schulkes¹⁸⁾ bereidden een lithium-chroomferriet — de nauwkeurige samenstelling is $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.25}\text{Cr}_{1.25}\text{O}_4$ — waarbij M_A en M_B op zodanige wijze met de temperatuur variëren dat bij een gegeven temperatuur het resulterend moment nul is. Van Wieringen¹⁹⁾ mat de g -factor van dit materiaal met behulp van ferromagnetische resonantie. Nu bestaat het magnetische moment van elk ion niet alleen uit het spin-magnetisch moment, doch er is ook een zekere bijdrage van de baanbeweging der elektronen, die voor verschillende ionen verschilt. Ten gevolge hiervan verdwijnen magnetisch moment en mechanisch moment niet bij precies dezelfde temperatuur; vandaar het merkwaardige gedrag van de g -factor.

Veel uitvoeriger gegevens over de partiële momenten kan men verkrijgen door middel van het Mössbauer-effect. Deze methode is onlangs door Van Loef²⁰⁾ toegepast op ferroxdure. De afbeelding (fig. 13a) toont de resultaten die hij verkreeg met een kobaltbron en een preparaat van $\text{BaO} \cdot 0.6\text{Fe}_2\text{O}_3$ met een groot percentage Fe-57. Wij zien niet alleen de normale hyperfijnstructuur doch we onderscheiden in elke hyperfijncomponent vier verschillende lijnen, die aan vier verschillende roosterplaatsen beantwoorden. Door kristalstructuuranalyse is het bekend dat er voor de ijzerionen vijf mogelijke roosterplaatsen zijn, maar het kan zijn

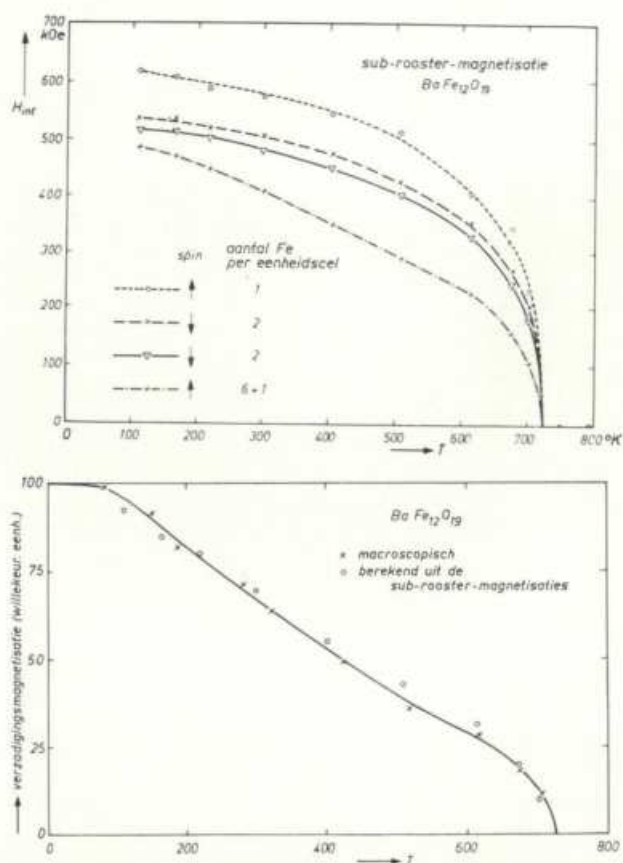


Fig. 13. a) Mössbauer-absorptionspectrum van Fe-57 in $\text{BaO} \cdot 0.6\text{Fe}_2\text{O}_3$.
b) Partiële magnetische momenten van Fe op vier deelroosters in $\text{BaO} \cdot 0.6\text{Fe}_2\text{O}_3$, bepaald uit het Mössbauer-spectrum.
c) Vergelijking tussen de som van de partiële momenten en de gemeten totale verzadigingsmagnetisatie.

dat één lijn zeer zwak is. Uit metingen bij verschillende temperaturen heeft Van Loef de temperatuurafhankelijkheid van de partiële momenten berekend; hun resulterend moment is in goede overeenstemming met de gemeten waarden van de macroscopische verzadigingsmagnetisatie (fig. 13b en c).

Wij geloven zeker dat voortzetting van dit werk ons verdere belangrijke informatie over de partiële momenten in ferrimagnetische stoffen zal verschaffen.

Alvorens het terrein van het ferromagnetisme te verlaten, wil ik nog even het verhaal van ferroxdure-ferroxplana-ferroxcone in herinnering brengen. We beschouwen een hexagonaal kristal en we nemen aan dat de azimuthale anisotropie van de magnetisatie gering is, zodat we de bijdrage van de kristalanisotropie tot de vrije energie kunnen schrijven als:

$$F = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta. \quad \dots (1)$$

De voorkeursoriëntatie (θ_0) hangt dan af van de waarden van K_1 en K_2 . Het resultaat ziet men in fig. 14. Het zal U opvallen dat er gebieden zijn waar $\theta_0 = 0$. Dit is het geval van ferroxdure. Er zijn

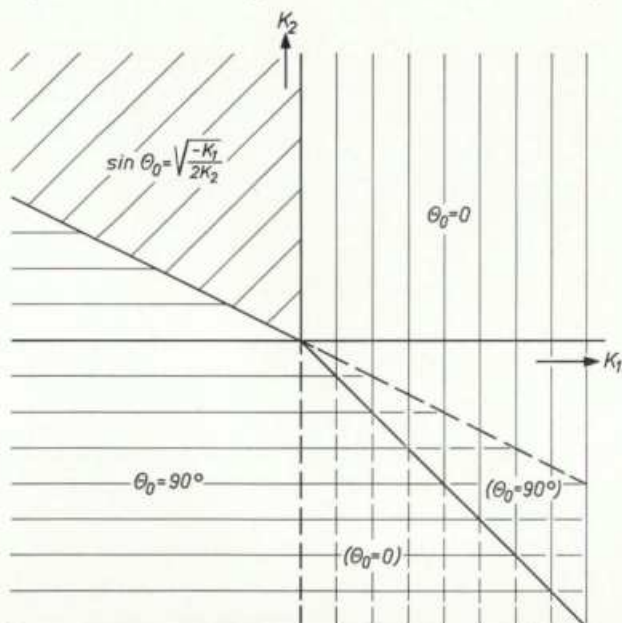


Fig. 14. In verschillende gebieden van het K_1 - K_2 -vlak vindt men verschillende soorten magnetische voorkeursoriëntaties: voorkeursrichting ($\theta_0 = 0$); voorkeursvlak ($\theta_0 = 90^\circ$); voorkeurskegel ($\sin \theta_0 = \sqrt{-K_1/2K_2}$).

gebieden waar $\theta_0 = \pi/2$. Dit is het geval van ferroxplana, waarvan we nog steeds hopen dat er een hoogfrequentmateriaal met uitzonderlijke eigenschappen uit zal komen. Er is echter, zoals Smit heeft opgemerkt²¹⁾, ook een gebied waar de voorkeursoriëntaties liggen op een kegelmantel. Van zulk een gedrag zijn inderdaad voorbeelden gevonden (ferroxcone). Dit geeft ons natuurlijk veel voldoening, al hebben we tot op heden nog geen nuttige toepassing hiervan kunnen bedenken. In de loop van dit Symposium zal dr. Enz U nog meer over voorkeursoriëntaties vertellen.

In het begin van mijn voordracht heb ik optische éénrichtingsystemen en microgolfgyrators genoemd en ik heb U terloops wat apparatuur van dit soort laten zien. Ik heb er nog niet op gewezen dat het

door Tellegen²²⁾ geformuleerde begrip van de gyrator een belangrijke schakel heeft gevormd tussen het idee van Rayleigh en de verwezenlijking door Hogan. Tellegen onderzocht uit formeel oogpunt vierpool-netwerken welke beschreven worden door:

$$\begin{cases} V_1 = A_{11}i_1 + A_{12}i_2, \\ V_2 = A_{21}i_1 + A_{22}i_2, \end{cases} \quad \dots (2)$$

en welke niet aan de symmetrievoorwaarde voldoen; in het bijzonder beschouwde hij geïdealiseerde netwerken waarvoor $A_{12} = -A_{21}$. Hij wees er tevens op dat het met systemen in een uitwendig magnetisch veld zeer wel mogelijk zou kunnen zijn dergelijke gyrators te verwezenlijken. Ik heb kunnen aantonen dat de symmetriebetrekkingen voor passieve vierpolen een speciaal geval vormen van de Onsagerrelaties voor niet-omkeerbare processen, welke op hun beurt weer berusten op de symmetrie tussen verleden en toekomst in de bewegingsvergelijkingen der elementaire deeltjes en in de vergelijkingen voor het elektromagnetische veld²³⁾. De volgende algemene formulering is derhalve van toepassing: indien een passieve vierpool de magnetische momenten $M_1, M_2, \dots$ omvat en aan uitwendige velden $H_1, H_2, \dots$ wordt blootgesteld, dan geldt:

$$\begin{aligned} A_{12}(H_1, H_2, \dots, M_1, M_2, \dots) &= \\ &= A_{21}(-H_1, -H_2, \dots, -M_1, -M_2, \dots). \quad (3) \end{aligned}$$

Ferromagnetisme doet ons natuurlijk ook denken aan radio-astronomie. Het is bekend dat het magnetisch gedrag van materie toegeschreven moet worden aan het bestaan van atomaire stromen. De betekenis — en wel de enige betekenis — van de magnetisatie M is dat de stroomdichtheid wordt gegeven door:

$$i = \text{rot } M. \quad \dots (4)$$

Toen het begrip van het spinnende elektron werd ingevoerd, is men aanvankelijk misschien geneigd geweest hierbij aan dipoolmomenten te denken, maar de theorie van Dirac heeft aangetoond dat dit onjuist is. In de grondtoestand van een waterstofatoom bij voorbeeld is er een kringstroom rond de kern. Deze stroom kan in zeer goede benadering beschreven worden door het analogon van de gebruikelijke macroscopische vergelijking:

$$i = \text{rot } \psi^* s \psi, \quad \dots (5)$$

waarin s de operator voor het spin-magnetisch moment is. Deze stroomverdeling veroorzaakt ter plaatse van de kern een magnetisch veld, dat met behulp van eenvoudige formules uit de elektrodynamica kan worden berekend. Het magnetisch

moment van de kern wordt in dit veld gericht, hetgeen leidt tot een hyperfijnsplitsing overeenkomende met een golflengte van 21 cm. De Nederlandse astronoom Van de Hulst voorspelde dat waterstofatomen in de wereldruimte deze spectraallijn moesten uitzenden. De lijn werd het eerst waargenomen door Purcell, doch de Nederlandse astronomen, die met hun werk wat achtergeraakt waren doordat een gedeelte van hun apparatuur door brand was vernield, behoorden tot de eersten die waardevolle inlichtingen over de structuur van ons melkwegstelsel uit zulke waarnemingen wisten te halen. Fig. 15 toont U de Nederlandse radiotelescoop te Dwingeloo, en het doet mij genoegen te kunnen vermelden dat ons laboratorium bij de bouw van verscheidene belangrijke onderdelen van de apparatuur hulp heeft kunnen verlenen ²⁴).

Wanneer we het ferromagnetisme beschouwen als een mogelijkheid om permanente kringstromen te krijgen, dringt zich direct een vergelijking met de supergeleiding op. Er zijn zeer diepgaande verschillen. Daar de stroom in magneten een spinstroom van het type $\psi^*(\Sigma s)\psi$ is, kan deze nooit een gat omsluiten. Dit is de reden waarom permanente magneten niet erg geschikt zijn om een homogeen veld langs de as van een lange cilinder op te wekken. Een stroom in een supergeleider daarentegen is van het type $\psi^*A\psi$, waarin A de vectorpotentiaal voorstelt, en kan gaten omsluiten. Het verschil komt duidelijk naar voren in het volgende eenvoudige proefje, dat Van Geuns heeft uitgevoerd. Een dikwandige cilinder van NbSn wordt tot beneden het sprongpunt afgekoeld, terwijl in de boring van de cilinder een precies passende staaf van „Ticonal” is geplaatst.



Fig. 15. Antenne van de Nederlandse radiotelescoop te Dwingeloo, die bij de voltooiing in 1956 de grootste beweegbare reflector ter wereld was. Verscheidene belangrijke gedeelten van de uitrusting zijn door ons laboratorium te Eindhoven ontwikkeld.

Beneden het sprongpunt trekt men het „Ticonal” eruit en er gaat een persisterende stroom vloeien. De volgende figuur geeft een schematische voorstelling van de stromen in de beide situaties (fig. 16). In de loop van ons Symposium zullen wij verscheidene proeven op het gebied van de supergeleiding demonstreren, in het bijzonder de elegante unipolaire dynamo die Volger heeft bedacht ²⁵). De machines voor het bereiken van lage temperaturen met behulp van het Stirling-proces zullen aanstands worden gedemonstreerd.

Soms denk ik wel eens dat onze successen met ferromagnetische keramische materialen onze aandacht in het verleden een tijdlang hebben afgeleid van het onderzoek van monokristallen — hoewel

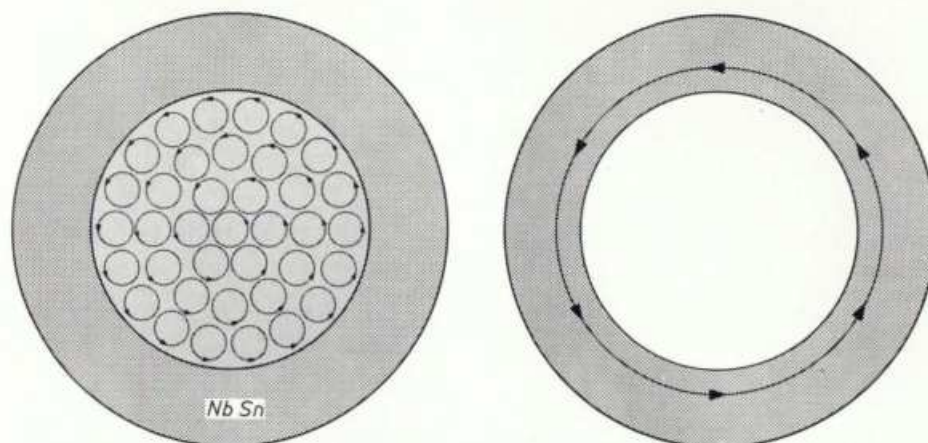


Fig. 16. Opwekking van een persistente stroom in een supergeleidende ring van NbSn door uittrekken van een nauw passende „Ticonal” staaf.

Van Arkel²⁶⁾ bij ons de fraaie methode gevonden had om monokristallen van hoogsmeltende metalen te doen groeien door transportreacties in de dampfase. Zo er al enige waarheid in deze gedachte is, we doen nu in elk geval ons best dit weer goed te maken. Het werk van P. Penning, Polder en Okkerse²⁷⁾ over de anomale transmissie van röntgenstralen illustreert de belangstelling die we voor perfecte, dislocatievrije kristallen hebben. Ik wijs ook op het werk van Hornstra²⁸⁾, die een zorgvuldige analyse van de verschillende mogelijke types dislocaties in ingewikkelde kristalstructuren heeft gemaakt.

Het ferromagnetisme is natuurlijk slechts een tak van de vaste-stoffysica, doch mij ontbreekt de tijd hier te spreken over ons werk aan halfgeleiders en hierop gebaseerde schakel-elementen, aan luminescentie- en fotogeleiding, aan metalen en aan oppervlakverschijnselen. Ik vertrouw dat deze onderwerpen in de voordrachten van anderen voldoende aan bod zullen komen.

Ik zou nochtans Uw aandacht willen vestigen op het belang van het vaste-stofonderzoek voor de ontwikkeling van elektronenbuizen. Onze röntgenbeeldversterker²⁹⁾ is

een waardevol hulpmiddel in het moderne röntgen-onderzoek geworden (fig. 17). Zijn elektronenoptisch systeem is eenvoudig en doelmatig, doch hij onderscheidt zich vooral door de combinatie van een fluorescentiescherm en een foto-emitterende laag; deze combinatie vereiste een heel speciale techniek. Onze nieuwste televisie-opneembuis, het „Plumbicon”, dat hier uitvoerig zal worden gedemon-

streerd, werkt volgens soortgelijke principes als het bekende vidicon. Toch is het een totaal andere buis; de bijzondere prestaties hiervan zijn het resultaat van een nauwkeurig onderzoek aan loodoxydelagen. En hoewel onze buizen voor centimeter- en millimetergolven het beste vakmanschap en een zorgvuldig ontwerp vereisen, hadden wij ze nooit kunnen maken zonder onze naleveringskatodes³⁰⁾.



Fig. 17. 9"-röntgenbeeldversterkers tijdens de fabricage.

We hebben vrij wat werk gedaan aan oxydekathodes, zowel empirisch als theoretisch. Misschien herinnert U zich b.v. het werk van Vink en Loosjes³¹⁾, die de geleiding in poreuze bariumoxydelagen verklaarden als geleiding van het elektronengas in de poriën. Ik zou er echter de nadruk op willen leggen dat het eerste idee voor de L-katode slechts indirect uit fundamenteel onderzoek is voortgekomen; deze katode is nl. uitgevonden door de chef van onze buizenwerkplaats, de heer Lemmens. Hij heeft bij een verkeersongeval enige maanden geleden het leven verloren, en ik wil hem hier gaarne nog postuum hulde brengen. In ons werk zijn we niet alleen afhankelijk van de prestaties van de grote wetenschappelijke pioniers, doch ook van de bekwaamheid, de intuïtie en de vasthoudendheid van eersteklas vaklieden.

De wisselwerkingen waarmee we in de vaste-stoffysica te maken hebben, zijn altijd van elektromagnetische oorsprong, doch elektrische krachten kunnen in vele verschillende vormen optreden: als eenvoudige Coulomb-krachten in heteropolare verbindingen, als afgeschermd Coulomb-krachten in de meer verfijnde versies van de theorie der elektronen in metalen, als plaatsruilwisselwerkingskrachten in homopolare verbindingen en in het ferromagnetisme. En ze veroorzaken ook een aantrekkingskracht tussen neutrale atomen en moleculen, zelfs wanneer deze zich zo ver van elkaar bevinden dat hun golf functies elkaar niet overlappen. Dergelijke krachten noemt men meestal Van-der-Waals-krachten, omdat de krachten die Van der Waals invoerde om het gedrag van niet-ideale gassen te verklaren althans gedeeltelijk van dit type zijn. De theorie hiervan is gegeven door F. London, die de volgende formule voor de wisselwerkingsenergie heeft afgeleid:

$$U = -\frac{3}{2} \frac{hc}{R^6} \sum_{n,r} \frac{a_n a_r}{\lambda_n + \lambda_r} \quad \dots \quad (6)$$

Hierin is R de onderlinge afstand, de sommering omvat alle aangeslagen toestanden van beide atomen, λ_n en λ_r zijn de golflengten die aan de aanslagenergie beantwoorden, en a_n en a_r zijn partiële polariseerbaarheden. Deze London-Van-der-Waals-krachten kunnen in sommige gevallen aanzienlijk bijdragen tot de bindingsenergie in vaste stoffen en ze spelen een belangrijke rol in adsorptieverschijnselen.

Hamaker³²⁾ was de eerste die erop wees dat de Van-der-Waals-aantrekkingskracht tussen colloïdale deeltjes van belang zou kunnen zijn, en later ontwikkelden Verwey en Overbeek³³⁾ de gede-

tailleerde theorie van de stabiliteit van lyofobe colloïden, waarbij de aantrekking door de Van-der-Waals-krachten tegengewerkt wordt door de afstotende werking van elektrische dubbellen. Een volgende stap deed Overbeek, toen hij vond dat een suspensie van kwartsdeeltjes stabiel was dan zijn formules deden verwachten. Hij concludeerde hieruit dat op grote afstanden de wisselwerking sterker dan omgekeerd evenredig met de zesde macht van de afstand moet afnemen, en hij merkte op dat dit te wijten zou kunnen zijn aan retardatie-effecten. Polder en ik³⁴⁾ konden dit vraagstuk met behulp van de quantum-elektrodynamica behandelen: wij vonden dat de formule van London vermenigvuldigd moet worden met een monotoon dalende correctiefactor. Voor het limietgeval $R \gg \lambda_n$ krijgt men:

$$U = -\frac{23}{8\pi^2} \times \frac{hc}{R^7} a_1(0) a_2(0), \quad \dots \quad (7)$$

waarin $a_1(0)$ en $a_2(0)$ de statische polariseerbaarheden zijn. Dit grensgeval kan heel eenvoudig worden behandeld door de verandering van de nulpuntsenergie van de lege ruimte te beschouwen. Door soortgelijke beschouwingen toe te passen op trilhouten met beweegbare wanden, kon ik een formule afleiden voor de aantrekkingskracht tussen twee geleidende platen. De kracht per cm^2 wordt gegeven door:

$$K = \frac{\pi hc}{480} \frac{1}{d^4}, \quad \dots \quad (8)$$

waarin d de afstand tussen de platen is. Sparnaaij³⁵⁾ slaagde erin deze kracht te meten en vond goede overeenstemming tussen theorie en experiment. Meer kwalitatieve ervaringen deed een andere werkgroep van ons laboratorium met dit soort krachten op, toen zij een metaaloppervlak moesten naderen met zeer dunne draden die eindigden in een bolletje.

Persoonlijk vind ik dit verband tussen colloïdchemie, Van-der-Waals-krachten, quantum-veldtheorie en nulpuntsenergie van de lege ruimte en de universele aantrekking tussen metalen heel grappig. Ik wil in dit verband ook opmerken dat men er tegenwoordig op uit is steeds kleinere dingen te maken. Mochten wij er ooit in slagen met afmetingen en afstanden van enkele tienden micron om te springen, dan zouden de krachten tussen metalen wel eens een overheersende invloed kunnen uitoefenen.

Van de hak op de tak springende heb ik in dit verhaal al heel veel onderwerpen genoemd en vele richtingen van onderzoek aangeduid. Ik heb gesproken vanuit het standpunt van de natuurkundige. Ik

meende dit met een gerust hart te kunnen doen, want de standpunten van de scheikundige en van de ingenieur zullen in het vervolg van deze bijeenkomst nog alleszins tot hun recht komen. Ik vrees echter dat één facet van ons werk te weinig aandacht zal krijgen, en wel de wiskundige kant ervan, die zich niet zo gemakkelijk leent tot korte voordrachten of pakkende demonstraties. Toch is sinds de tijden van Van der Pol de toegepaste wiskunde bij ons een bloeiende traditie. Gelukkig heb ik nog juist de tijd om een enkel brokje wiskunde uit te leggen, en hiervoor kies ik om zijn bijzondere elegantie en eenvoud de stelling van Van der Pauw³⁶⁾. Als we een soortelijke weerstand ϱ moeten bepalen, nemen we gewoonlijk een prismatische of cilindrische staaf (fig. 18). De stelling van Van der Pauw zegt dat

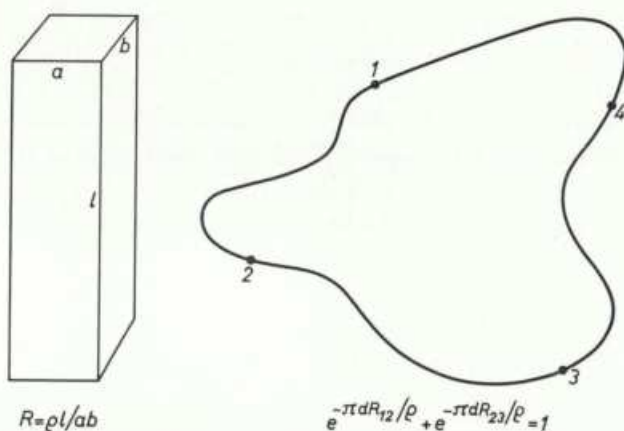


Fig. 18. Ter toelichting van de stelling van Van der Pauw.

het ook gaat met een plaat van bekende en constante dikte d doch van overigens volkomen willekeurige vorm, mits vier kleine contacten op willekeurige punten (1, 2, 3, 4) van de omtrek zijn aangebracht. Definiëren wij R_{12} als de verhouding van de spanning tussen 1 en 2 tot de stroom tussen 3 en 4, en op overeenkomstige wijze R_{23} , dan geldt:

$$e^{-\pi d R_{12} / \varrho} + e^{-\pi d R_{23} / \varrho} = 1. \quad (9)$$

Men bewijst dit als volgt. Neem eerst een oneindig halfvlak. Dan zijn alle potentialen logaritmisch en het bewijs is elementair. Beeld nu het halfvlak conform af, zodanig dat zijn begrenzing overgaat in de gewenste contour, en bedenk dat de weerstand invariant is voor conforme afbeelding. Dat is alles. Bijzonder simpel, als je maar op het idee komt, en dat deed blijkbaar niemand vóór Van der Pauw. En bijzonder nuttig ook: men meet twee weerstanden en leest ϱ/d af uit een curvenschaar. We passen

dit niet alleen toe in het laboratorium, maar ook in onze fabrieken, om soortelijke weerstanden te controleren.

Hiermee wil ik mijn verhaal besluiten.

LITERATUUR

- 1) G. Holst en L. Hamburger, Proc. Kon. Ned. Akad. Wet., Amsterdam, **18**, 872, 1915.
- 2) W. Uytterhoeven en C. Verburg, Bull. techn. Ass. Ing. Ec. polytechn. Brux. **29**, 138, 1933.
- 3) W. Elenbaas, Z. techn. Phys. **17**, 61, 1936.
- 4) M. H. A. van de Weijer, Philips techn. T. **23**, 226, 1961.
- 5) K. van Duuren, A. J. M. Jaspers en J. Hermesen, Nucleonics **17**, no. 6, 86, 1959.
- 6) N. F. Verster, H. L. Hagedoorn, J. Zwanenburg, A. J. J. Franken en J. Geel, Nucl. Instr. Meth. **18/19**, 88, 1962.
- 7) J. L. H. Jonker, A. J. W. M. van Overbeek en P. H. de Beurs, Philips Res. Repts. **7**, 81, 1952.
- 8) O. Reifenschweiler, Nucleonics **18**, no. 12, 69, 1960.
- 9) M. T. Vlaardingerbroek, K. R. U. Weimer en H. J. C. A. Nunnink, Philips. Res. Repts. **17**, 344, 1962.
- 10) H. G. van Bueren, J. Haisma en H. de Lang, Physics Letters **2**, 340, 1962.
- 11) A. Bouwers en A. Kuntke, Z. techn. Phys. **18**, 209, 1937.
- 12) F. M. Penning, Physica **4**, 71, 1937.
- 13) F. M. Penning en J. H. A. Moubis, Physica **4**, 1190, 1937.
- 14) J. L. Snoek, Physica **3**, 463, 1936; New developments in ferromagnetic materials, Elsevier, Amsterdam 1949.
- 15) B. Jonas en H. J. Meerkamp van Embden, Philips techn. T. **6**, 8, 1941.
- 16) A. I. Luteijn en K. J. de Vos, Philips Res. Repts. **11**, 489, 1956.
- 17) J. J. Went, G. W. Rathenau, E. W. Gorter en G. W. van Oosterhout, Philips techn. T. **14**, 33, 1952.
- 18) E. W. Gorter en J. A. Schulkes, Phys. Rev. **93**, 487, 1953.
- 19) J. S. van Wieringen, Phys. Rev. **90**, 488, 1953.
- 20) J. J. van Loef, verschijnt binnenkort.
- 21) J. Smit, J. Phys. Radium **20**, 362, 1959.
- 22) B. D. H. Tellegen, Philips Res. Repts. **3**, 81, 1948.
- 23) H. B. G. Casimir, Rev. mod. Phys. **17**, 343, 1945.
- 24) Ch. L. Seeger, F. L. H. M. Stumpers en N. van Hurck, Philips techn. T. **21**, 313, 1959.
- 25) J. Volger en P. S. Admiraal, Physics Letters **2**, 257, 1962.
- 26) A. E. van Arkel, Physica **3**, 76, 1923.
- 27) P. Penning en D. Polder, Philips Res. Repts. **16**, 419, 1961.
- 28) J. Hornstra, Phys. Chem. Solids **5**, 129, 1958.
- 29) M. C. Teves en T. Tol, Philips techn. T. **14**, 65, 1952.
- 30) H. J. Lemmens, M. J. Jansen en R. Loosjes, Philips techn. T. **11**, 349, 1949.
- 31) R. Loosjes en H. J. Vink, Philips Res. Repts. **4**, 449, 1949.
- 32) H. C. Hamaker, Physica **4**, 1058, 1937.
- 33) E. J. W. Verwey en J. Th. G. Overbeek, Theory of the stability of lyophobic colloids, Elsevier, Amsterdam 1948.
- 34) H. B. G. Casimir en D. Polder, Nature **158**, 787, 1946.
- 35) M. J. Sparnaaij, Nature **180**, 334, 1957.
- 36) L. J. van der Pauw, Philips Res. Repts. **13**, 1, 1958.

Samenvatting. Een voordracht waarin talrijke onderwerpen van onderzoek in het Philips' Natuurkundig Laboratorium worden aangestipt. O.a. worden besproken gasontladingen, ferromagnetisme, vaste-stoffysica en netwerktheorie. De onderzoeken op deze uiteenlopende gebieden hebben enerzijds geleid tot industriële producten, zoals lampen, telbuizen, cyclotrons, ferromagnetische materialen en bouwelementen enz. — waarvan er een aantal in de voordracht worden getoond —; anderzijds hebben ze hun neerslag gevonden in algemene theoretische bijdragen tot de fysica, waarvan er enkele worden behandeld.

MODULATIE, GISTEREN EN MORGEN

door F. de JAGER *).

621.376

Problemen in de huidige communicatie

Vijftig jaar geleden bestond er geen behoefte aan een theorie over modulatie. Men had het probleem, door middel van radiogolven spraak en muziek over te zenden, opgelost, en de meeste daarmee samenhangende natuurkundige problemen werden goed begrepen. Degenen die deze principes in toepassing brachten, waren zo gelukkig te kunnen beschikken over een geweldige frequentieruimte, leeg en uitgestrekt als een oceaan.

Thans is de situatie echter wel veranderd. De steeds groeiende behoefte aan meer telecommunicatiekanalen heeft tot gevolg gehad dat deze eens zo stille frequentieruimte nu gevuld is met televisie-, telefonie-, radar- en regelsignalen, afkomstig van een groot aantal zenders, die alle hun vermogen in deze frequentieruimte uitstralen. Inderdaad zijn we niet ver meer verwijderd van de bekende situatie op een cocktailparty, waar ieder zijn stem verheft om boven het geluid van anderen uit te komen. De door ons zelf geproduceerde ruis vormt dan ook bij de huidige telecommunicatie een veel groter probleem dan de geringe atmosferische storingen waarmee men in de begintijd van de telecommunicatie te kampen had. Zo worden wij nu gedwongen ten behoeve van een meer efficiënte overdracht van informatiesignalen de theorie van de modulatie nauwkeuriger te bestuderen.

Drie problemen komen hierbij aan de orde. Ten eerste: hoe moet de signaaloverdracht worden gerealiseerd bij aanwezigheid van een sterke achtergrondruis? Ten tweede: hoe dit te doen met gebruikmaking van een minimaal vermogen? Ten derde: hoe daarbij een minimum van de in totaal beschikbare frequentieruimte in beslag te nemen? Dit zijn de problemen vanuit theoretisch oogpunt. Daarmee samenhangend komen dan de praktische problemen om de theoretisch juiste modulatiemethodes te realiseren, zonder in al te ingewikkelde of kostbare apparatuur te vervallen.

Gelukkig heeft de ontwikkeling van elektrische onderdelen gedurende de laatste tien jaar ons de beschikking gegeven over kleine, goedkope en betrouwbare elementen, zoals transistors en magnetische kernen, waarmee gecompliceerde technische ontwerpen kunnen worden gerealiseerd, die men

vroeger niet voor mogelijk had gehouden. (Men denke b.v. aan de moderne, zeer snelle, elektronische rekenmachines.) In zeker opzicht bevinden wij ons nu dan ook in de situatie van een kind dat op zijn verjaardag een grote blokkendoos ten geschenke heeft gekregen en nu nog slechts hoeft te beslissen wat daarmee zal worden gebouwd. Zo gezien is de modulatietheorie de kunst deze blokken op efficiënte wijze te combineren. Dit is overigens slechts mogelijk door daarbij van de juiste natuurkundige en mathematische grondslagen uit te gaan, zodat men ten slotte weer met een studie van de natuurkunde te maken heeft.

Het is wellicht interessant nu iets nader in te gaan op de principes die van invloed zijn geweest op modulatiemethodes uit het verleden en op die welke — voor zover te voorzien — van belang kunnen zijn voor de ontwikkeling in de toekomst.

Oudere modulatiemethodes

De oorspronkelijke, en in zeker opzicht meest natuurlijke wijze om informatiesignalen over te brengen, bestaat uit het variëren van de amplitude van een hoogfrequente sinusvormige trilling. Dit is de zg. amplitudemodulatie, die nog steeds wordt toegepast voor omroepzenders in het lange- en in het middengolfgebied. In 1933 is echter door Armstrong ontdekt dat, in het algemeen gesproken, een ruiscomponent minder gemakkelijk de frequentie dan de amplitude van een dergelijke trilling zal storen. Daarom hield Armstrong de amplitude op een constante waarde en bracht hij de informatiesignalen over door de frequentie te variëren. Dit is de zg. frequentiemodulatie, welke zeer geschikt is gebleken voor het onderdrukken van ruis. Tegenwoordig wordt deze methode zo algemeen toegepast (FM-omroepzenders, geluidsoverbrenging bij televisie, enz.) dat men zich nauwelijks nog kan voorstellen dat deze methode in de begintijd van de telecommunicatie als zeer revolutionair gold.

Het natuurkundige principe waarop de frequentiemodulatie berust, is in wezen vrij eenvoudig. In het begin vereiste de technische uitvoering zoveel apparatuur dat deze een gehele laboratoriumtafel besloeg. Thans is het niet moeilijk het gehele systeem te realiseren binnen de afmetingen van een lucifersdoosje. Dit illustreert hoe een nieuw technisch principe, dat in het begin nog op ingewikkelde wijze

*) Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

moest worden uitgevoerd, na enkele jaren ontwikkeling van de desbetreffende onderdelen tot een eenvoudige uitvoeringsvorm kan worden teruggebracht. In dit opzicht mogen wij optimistisch zijn voor de toekomstige ontwikkeling van nieuwe ideeën. Inderdaad verschaft de voortschrijdende techniek op het gebied van halfgeleiders ons reeds de mogelijkheid steeds meer taken te verrichten met behulp van een steeds kleiner aantal moleculen.

Impulsmodulatie: het invoeren van niet-lineaire technieken

Bij de hiervoor beschouwde modulatiemethodes wordt voor het overbrengen van informatiesignalen gebruik gemaakt van sinusvormige trillingen, door ofwel de amplitude ofwel de frequentie te variëren. Het overbrengen kan echter even goed gebeuren door een modulatie van korte impulsen, hetzij in amplitude, hetzij in tijd. Opmerkelijk is dat, hoewel deze mogelijkheid theoretisch reeds lang voorzien was, de praktische uitvoering ervan betrekkelijk lang op zich heeft laten wachten. Waarschijnlijk is dit een gevolg van de noodzaak hierbij niet-lineaire methodes toe te passen, en inderdaad is een groot deel van de nodige circuits pas ontwikkeld gedurende de tweede wereldoorlog. Technisch betekende de overgang van sinusvormige op impulsvormige signalen echter meer dan alleen een verandering in apparatuur. Alle definities waren immers gebaseerd op de toepassing van lineaire systemen en de daarmee samenhangende welbekende lineaire differentiaalvergelijkingen. Bij toepassing van de nieuwe impulstechniek bevatten veel schakelingen een niet-lineair element, dat niet langer beschouwd kon worden als een benadering van het lineaire model, maar waarvan de niet-lineariteit een fundamenteel karakter vertoonde.

Deze invoering van niet-lineaire elementen in schakelingen die zich verder lineair gedragen, geeft aanleiding tot zeer moeilijke mathematische problemen, die nog slechts ten dele zijn opgelost. In dit verband noemen wij de naam van Balthasar van der Pol, die gedurende vele jaren op dit laboratorium heeft gewerkt en een aantal fundamentele problemen op dit gebied heeft onderzocht ¹⁾. Het fascinerende in deze gecombineerde lineaire en niet-lineaire schakelingen is dat men verschillende effecten heeft ontdekt die tot belangrijke technische toepassingen hebben geleid. De parametrische versterking bij hoge frequenties b.v. behoort tot dit type verschijnselen. Hier leiden de in een lineair netwerk geïntroduceerde veranderingen tot een

energieuitwisseling tussen de verschillende frequenties, welke voor versterking kan worden benut.

Bij het beschouwen van de mogelijkheid informatie door middel van gemoduleerde impulsen over te zenden, bleek een grote overeenkomst met de modulatie van sinusvormige trillingen te bestaan. Weer was de modulatie van de amplitude zeer eenvoudig, doch deze gaf geen vermindering van de ruis. Het in de tijd moduleren van de impulsen gaf echter wel een verbetering, net als bij de hiervoor genoemde frequentiemodulatie. De analyse van beide systemen heeft aangetoond dat deze verbetering evenredig is met de voor de transmissie gebruikte bandbreedte.

Naar aanleiding hiervan heeft gedurende enige tijd de opvatting bestaan dat elke verbetering in signaal-ruisverhouding gepaard gaat met een evenredige vergroting van de bandbreedte. Deze conclusie bleek echter onjuist in het licht van de door Shannon e.a. opgestelde informatietheorie ²⁾. Op zuiver mathematische grondslag is door Shannon de grens van de bereikbare verbetering afgeleid voor het geval dat men de best mogelijke signaalcodering zou toepassen. Hieruit is duidelijk gebleken dat deze verbetering, bij een vergroting van de bandbreedte, veel sterker dan evenredig kan toenemen, en in feite een exponentieel karakter heeft.

Impulsmodulatie: het vertalen van spraak in getallen

Hoewel we nog ver verwijderd zijn van de door Shannon aangegeven bovengrens (waarbij overigens zeer grote vertragingstijden zouden moeten optreden), is er nu toch één modulatiemethode bekend waar deze exponentiële verbetering van de signaal-ruisverhouding met de bandbreedte gerealiseerd kan worden. Dit is de zg. impulsmodulatie. Het hieraan ten grondslag liggende idee is dat men signalen als spraak of muziek niet moet overbrengen in de vorm waarin zij door een microfoon worden afgegeven, doch dat men deze signalen moet overzenden als getallen. Dit betekent dat men aan de zenzijde de signalen analyseert en omzet in een reeks impulsen van de waarde 1 of 0, en dat men aan de ontvangzijde deze binaire getallen weer gebruikt voor een reconstructie van de oorspronkelijke signaalgewicht (fig. 1).



Fig. 1. Schema van het overbrengen van een signaal (spraak) door middel van impulsmodulatie. C coderingstoestel, waarin spraak wordt omgezet in een serie „1”- en „0”-impulsen. D decoderingstoestel, waarin een signaal wordt gereconstrueerd dat nagenoeg gelijk is aan de originele spraak.

¹⁾ Balth. van der Pol, Selected scientific papers, North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1960.

²⁾ C. E. Shannon, A mathematical theory of communication, Bell Syst. tech. J. 27, 379-423 en 623-656, 1948.

Dit principe vertoont grote overeenkomst met het overbrengen van een grafiek door middel van een tabel die de horizontale en verticale coördinaten geeft. Inderdaad wordt in de praktijk de amplitude van de spraak met kleine tijdsverschillen gemeten en daarbij de amplitudenschaal verdeeld in b.v. 128 verschillende niveaus. Elk van deze niveaus kan worden gekarakteriseerd door een groep van zeven binaire eenheden, aangezien hiermee juist 128 verschillende getallen kunnen worden weergegeven. Met behulp van een tamelijk geraffineerde apparatuur kunnen deze getallen dan weer in de bijbehorende spanningen worden omgezet. Door gebruik van deze modulatiemethode kan een maximale afwijking van 1% of nog kleiner in het uitgangssignaal worden gegarandeerd, terwijl toch tamelijk grote afwijkingen (tot 50%) in de ontvangen impulsen kunnen worden toegelaten (fig. 2). Het nut-

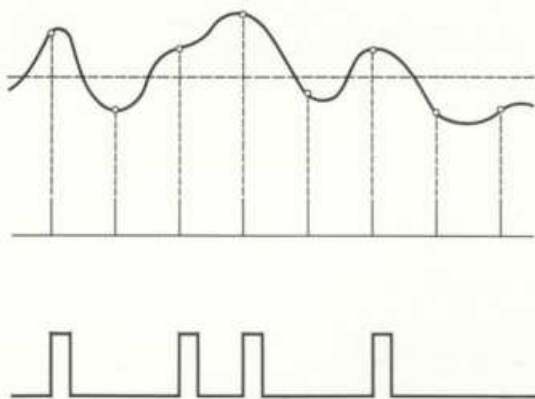


Fig. 2. Regeneratie bij een systeem van impulscode modulatie, van een serie impulsen die door ruis zijn beïnvloed. Het signaal dat binnenkomt, wordt op de regelmatige tijdstippen gemeten en al naar gelang het wel of niet boven het gestreept getekende niveau uitkomt, wordt wel een impuls geproduceerd of niet. Storingen worden aldus volledig weggewerkt mits ze een bepaalde maximale sterkte niet overschrijden.

tige gebruik van bandbreedte kan hierbij worden geïllustreerd door op te merken dat de toevoeging van één binaire eenheid tot een groep van b.v. zeven binaire eenheden het totale aantal beschikbare amplitudeniveaus verdubbelt, terwijl het effect op de resulterende impulsfrequentie klein is, nl. overeenkomend met de verhouding acht tot zeven. Bij deze systemen hebben we dus geen exacte weergave van de oorspronkelijke signalen, doch het overblijvende verschil (gewoonlijk „quantiseringsruis” genoemd) kan zeer klein gemaakt worden door de impulsfrequentie voldoende hoog te kiezen (gewoonlijk 50 à 60 kHz).

Bij gebruik van een verbinding die uit een groot aantal in serie geschakelde secties bestaat, heeft het verzenden van informatie door middel van getallen nog een voordeel extra. Na elke sectie kunnen

dan de ontvangen impulsen geregenereerd worden, en zo kunnen kleine ruiscomponenten die in elke sectie ontstaan, volledig worden geëlimineerd; er kan zich dan geen accumulatie van deze ruiscomponenten voordoen. Bij de meer conventionele modulatiesystemen daarentegen, waar informatie wordt overgedragen door een fysische grootte te variëren in evenredigheid met het oorspronkelijke signaal, bestaat geen mogelijkheid onderscheid te maken tussen signaal en ruis, zodat daar noodgedwongen de ruisbijdragen uit de verschillende secties zullen accumuleren.

Door een speciaal type rekenmachine te gebruiken voor het coderen en decoderen van de spraak, kan men aldus een nuttiger gebruik van bandbreedte maken dan mogelijk is bij de oudere modulatiemethodes. Natuurlijk doet de vraag zich voor of dit alleen een academisch resultaat is, of dat het ook van praktisch belang kan zijn. Gedurende de laatste jaren is duidelijk geworden dat een belangrijk technisch probleem op deze wijze kan worden opgelost. Het betreft hier de overbelaste telefoonverbindingen tussen telefooncentrales in grote steden. Een groot aantal telefoonverbindingen maakt hier van dezelfde kabel gebruik (tot 900 aderpennen in één kabel). Het leggen van nieuwe kabels in deze steden geeft zoveel moeilijkheden dat men de groeiende behoefte aan meer telefoonverbindingen het liefst opvangt door van het bestaande kabelnet gebruik te maken. Hierbij zou het voor de hand liggen het aantal telefoonverbindingen uit te breiden door van hogere frequenties gebruik te maken. Daartoe moet de onderlinge beïnvloeding van de verschillende aderpennen in één kabel onschadelijk gemaakt worden, want anders leidt dit tot overspreken tussen de verschillende telefoniekanalen. Ongelukkigerwijze neemt dit oversprekeffect ongeveer evenredig met de frequentie toe. Bij conventionele methodes voor ruisvermindering worden storingen onderdrukt door een evenredige vergroting van de bandbreedte, doch voor storingen die hierbij in dezelfde verhouding toenemen, is dit niet effectief. De ruis moet, als functie van de gebruikte bandbreedte, sneller afnemen dan het oversprekeffect toeneemt. Een mogelijkheid daartoe wordt gegeven door de impulscode modulatie. In praktische systemen, zoals deze kort geleden in de Verenigde Staten van Amerika zijn geïnstalleerd³⁾, worden impulsfrequenties van ongeveer $1\frac{1}{2}$ miljoen impulsen per seconde op deze kabels gebruikt. Het resultaat is dat het aantal telefoonverbindingen met een

³⁾ C. G. Davis, An experimental pulse code modulation system for short-haul trunks, Bell Syst. tech. J. 41, 1-24, 1962 (no. 1).

factor 12 kan worden uitgebreid en dat de kwaliteit van deze nieuwe verbindingen even goed of zelfs beter dan die van de oude is.

Deltamodulatie: invoering van een geheugen

Om een codering in het tweetallige stelsel te realiseren, zal altijd een of ander soort rekenmachine nodig zijn. De vraag komt naar voren of de omzetting van een continu signaal in een reeks impulsen van de waarde 1 of 0, en terug, niet met een veel eenvoudiger apparaat kan worden uitgevoerd. Dit probleem is enkele jaren geleden door Schouten e.a. in dit laboratorium onderzocht. Daarbij is gevonden dat het niet nodig is te werken met codes die bestaan uit groepen van een groot aantal binaire eenheden, doch dat de reeks van 1- en 0-impulsen ook zodanig kan worden gerangschikt dat de impulsreeks slechts aan een elektrisch netwerk of filter behoeft te worden toegevoerd om het gewenste signaal aan de uitgang te verkrijgen. Deze methode is deltamodulatie genoemd; zij is gebaseerd op een eenvoudig regelmechanisme ⁴⁾.

Om de impulsen in deze reeks in de juiste volgorde te kunnen plaatsen, moeten drie dingen in rekening gebracht worden: de momentele afwijking tussen het oorspronkelijke en het benaderingssignaal, de manier waarop voorafgaande „quantiserings“-fouten nog kunnen worden hersteld en de te verwachten veranderingen van de informatiesignalen. Men zou kunnen zeggen dat elke beslissing over het uitzenden van een 1- of een 0-impuls gebaseerd moet zijn op het heden, het verleden en de toekomst. Dit kan allemaal gebeuren door gebruik te maken van een lineair netwerk, met de functie van een geheugen, dat in een niet-lineaire teruggekoppelde schakeling is aangebracht, zodanig dat de schakeling zichzelf corrigeert ⁵⁾ (fig. 3 en 4).

Analyseert men het principe van de deltamodulatie, dan blijkt een grote overeenkomst te bestaan met de wijze waarop een auto op de weg bestuurd wordt. De manier waarop de informatie wordt overgebracht, kan nl. door het volgende model worden geïllustreerd. Wanneer het oorspronkelijke informatiesignaal overeenkomt met een flauw gebogen weg, kan de zender worden gezien als een auto die over deze weg wordt gestuurd. De bewegingen (impulsen) die hier aan het stuurwiel worden gegeven, dwingen de auto deze weg te volgen. Hierbij is inderdaad sprake van een teruggekop-

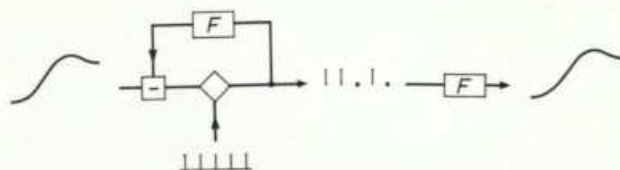


Fig. 3. Schema van een verbinding met behulp van deltamodulatie. Een „gequantiseerde“ terugkoppelketen aan de zenderzijde produceert „1“- en „0“-impulsen. De terugkoppeling werkt dat het signaal aan de uitgangszijde van het filter *F* nagenoeg hetzelfde is als het originele signaal. Net zo'n filter kan derhalve aan de ontvangzijde worden gebruikt om de serie impulsen om te zetten in een signaal dat het origineel benadert.

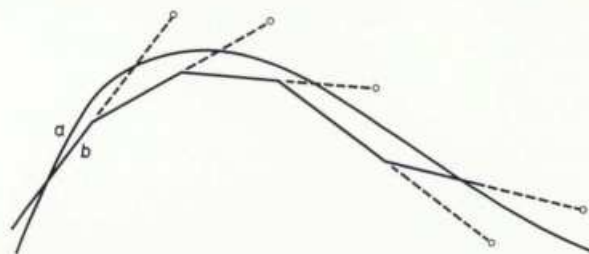


Fig. 4. Benadering van een continu signaal *a* door een gequantiseerd signaal *b*, door de helling op regelmatige tijdstippen aan te passen. Beslissingen of de helling zal worden veranderd, worden niet gebaseerd op de momentele afwijking tussen het originele en het benaderende signaal, maar op hun voorspelde waarden.

peld circuit, want de automobilist kijkt naar de voor hem liggende weg, voorziet de bewegingen van de auto, en beslist op grond van de verwachte afwijkingen of al of niet een volgende impuls op het stuurwiel dient te worden uitgeoefend. Wanneer nu identieke impulsen worden gegeven aan het stuurwiel van een hypothetische auto die rijdt in een woestijn, dan kan een vrij goede benadering verkregen worden van de weg die door de eerste auto wordt gevolgd.

Het is gebleken dat spraak zich goed leent voor deze wijze van gecodeerde overdracht. Kort geleden hebben Balder en Kramer in dit laboratorium dezelfde methode ook toegepast bij normale televisie ⁶⁾. De hele rekenmachine, die zij hierbij gebruikten en die 100 miljoen beslissingen per seconde neemt, is in een klein doosje ondergebracht (fig. 5). Deze hoge snelheid kan overigens slechts worden bereikt door gebruik te maken van tunnel diodes: zeer kleine elektronische onderdelen, vervaardigd van halfgeleiders, die in ongeveer één duizendste microseconde van de ene in de andere toestand kunnen worden omgeschakeld.

Het TASI-systeem: gebruikmaking van de tijdverdeling in spraak

Bij alle hiervoor besproken modulatiemethodes is de vorm van de signalen die moeten worden over-

⁴⁾ J. F. Schouten, F. de Jager en J. A. Greefkes, Deltamodulatie, een nieuw modulatiesysteem voor telecommunicatie, Philips techn. T. 13, 249-258, 1951.

⁵⁾ F. de Jager, Delta modulation, a method of P.C.M. transmission using the 1-unit code, Philips Res. Repts. 7, 442-466, 1952.

⁶⁾ J. C. Balder en C. Kramer, Video transmission by delta modulation using tunnel diodes, Proc. IRE 50, 428-431, 1962 (no. 4).

gezonden van betrekkelijk weinig belang; alleen moet de amplitude natuurlijk begrensd zijn. In moderne modulatiesystemen wordt echter steeds meer rekening gehouden met de statistische eigenschappen van de signalen, zowel wat hun verdeling in tijd, in frequentie als in amplitude betreft. Spraak is b.v. nooit een continue stroom van informatie, doch bestaat uit een groot aantal korte signalen, vaak niet langer dan één tiende seconde. De tijd dat werkelijk signalen aanwezig zijn, beslaat dus slechts een deel van de tijd en men kan overwegen de stille tijdsintervallen voor het overbrengen van andere informatiesignalen te gebruiken. Dit wordt ook in werkelijkheid reeds gedaan bij verbindingen die van een transatlantische telefoonkabel gebruik maken. In een grote groep spraaksignalen worden de signalen in delen gesplitst en slechts die delen overgezonden waarin informatie aanwezig is. Deze worden dan voorzien van een adres, zodanig dat de elementaire stukjes spraak aan de juiste ontvanger kunnen worden toegevoerd. Dit systeem, genaamd Time Assignment Speech Interpolation, is door Western Electric in 1960 op transatlantische kabels in gebruik genomen. Als resultaat is de oorspronkelijke capaciteit van 36 kanalen vergroot tot 72 kanalen ⁷⁾.

Dergelijke systemen zijn uiteraard vrij ingewikkeld, maar aan de andere kant zijn ze ook zeer economisch. Immers de installatiekosten van een transatlantische kabel bedragen ongeveer 40 miljoen dollar, zodat het voor een verdubbeling van het aantal kanalen veel voordeliger is een wat ingewikkelder apparatuur te bouwen dan een nieuwe kabel te leggen.

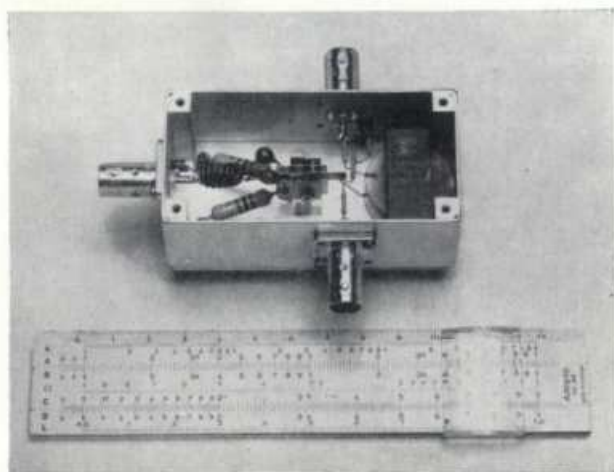


Fig. 5. Een deltamodulator met tunneldiodes voor de codering van televisiesignalen ⁸⁾.

Spraakbandcompressie: studie van de parameters in spraak

Wij komen nu tot de studie van de eigenlijke spraaksignalen. Bij de analyse van spraak vindt men dat deze kan worden gekarakteriseerd door een groot aantal parameters zoals intensiteit, toonhoogte, spectrale verdeling, enz. Eén ding is zeker: de maximale snelheid waarmee deze parameters variëren, is veel lager dan de snelheidsvariaties die in een normaal telefoniekanaal kunnen worden overgebracht. Dit is eenvoudig een gevolg van het feit dat de snelheid van spraak begrensd wordt door de spierbewegingen. De bruikbare bandbreedte van een telefoniekanaal wordt aldus op weinig efficiënte wijze benut. Men kan dit zelfs numeriek uitdrukken. Volgens Shannons wet over optimale codering heeft een normaal telefoniekanaal met een bandbreedte van 3 kHz en een signaal-ruisverhouding van 50 dB een bovengrens voor het overbrengen van ongeveer 50 000 bits per seconde. Onze zintuigen zijn evenwel niet in staat meer dan ca. 50 bits te verwerken. Desalniettemin is voor de exacte weergave van een spraaksignaal een bandbreedte van 3 kHz nodig, en dit betekent dat een groot gedeelte van onze spraaksignalen geen nieuwe informatie bevat, maar slechts uit herhalingen bestaat. Dit verschijnsel kan in elk oscillogram van spraak worden waargenomen (fig. 6). Natuurlijk is deze redundantie in het dagelijks leven zeer belangrijk, want zij stelt ons in staat, spraak ondanks veel storingen nog te verstaan.

In technisch opzicht betekent deze redundantie dat, als het mogelijk zou zijn de juiste fysische parameters in de spraak te onderscheiden, het overbrengen van spraak door middel van deze parameters in een veel kleinere bandbreedte zou kunnen geschieden dan we nu gewend zijn. Theoretisch zou een reductie in bandbreedte van 1 op 100 of meer kunnen worden bereikt, doch reeds als men een reductie van 1 op 10 zou kunnen realiseren, zou dit zeer welkom zijn. Zowel voor transatlantische kabels als voor de overbelaste frequentiegebieden bij radiotransmissie zou dit van groot economisch belang zijn.

De studie van de parameters in spraak gaat reeds terug tot de 18de eeuw, toen Wolfgang von Kempelen zijn beroemde spreekmachine bouwde, waarin met behulp van hoorns en blaasbalgen de klanken uit de spraak konden worden gereproduceerd ⁸⁾. De weergave van deze spraakklanken schijnt vrij goed te zijn geweest, daar we vermeld vinden dat

⁷⁾ J. M. Fraser, D. B. Bullock en N. G. Long, Over-all characteristics of a TASI system, Bell Syst. tech. J. **41**, 1439-1454, 1962 (no. 4).

⁸⁾ H. Dudley en T. H. Tarnoczy, The speaking machine of Wolfgang von Kempelen, J. Acoust. Soc. Amer. **22**, 151-166, 1950. Zie ook Philips techn. T. **24**, 354, 1962 (no. 11/12).

deze machine zelfs Latijn kon spreken. Een meer recente spreekmachine is geconstrueerd en gedemonstreerd door Dudley in 1939 ⁹⁾ (fig. 7). Deze elektrische machine kon bediend worden met de hand, doch de nodige parameters konden ook uit echte spraak worden verkregen door middel van een aan de zenzijde geplaatste analysator, die verbonden was met de synthetische spreekmachine aan de ontvangkant. In deze zg. „vocoder” werd de spraak overgezonden met behulp van een groot aan-

deze eerste vocoder waren veelbelovend, hoewel de gereproduceerde spraak niet volkomen natuurlijk klonk.

Herkenning van patronen: de ontbrekende schakel

De proefnemingen met spraakbandcompressiesystemen zijn sindsdien voortgezet, maar het bleek zeer moeilijk te zijn de kwaliteit van natuurlijke spraak te evenaren. Dit probleem moet echter worden opgelost, vóór toepassing in het normale telefoon-

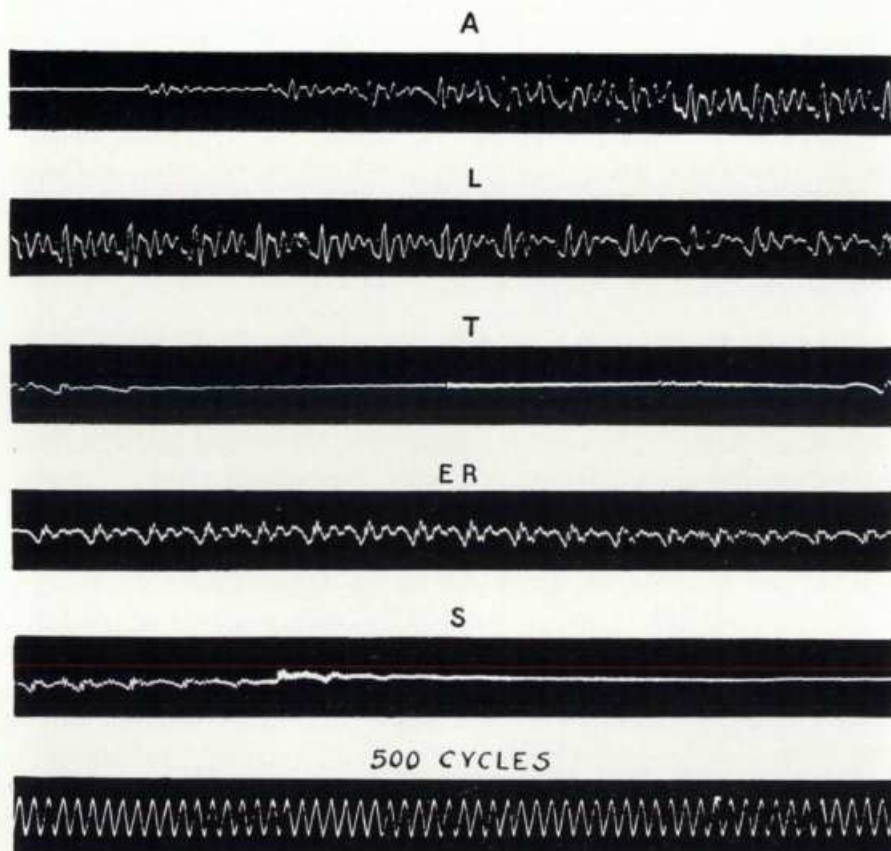


Fig. 6. Oscillogrammen van een willekeurig woord („ALTERS”), waarin de periodiciteit in spraak tot uiting komt. (Uit H. Fletcher, *Speech and hearing in communication*, blz. 33, Van Nostrand, New York 1953.)

tal parameters, die alle zo langzaam veranderen dat de bandbreedte een factor 10 kon worden gereduceerd. Het principe dat hieraan ten grondslag ligt, is het volgende. Men verdeelt de frequentieband voor spraak in een groot aantal kanalen, meet het vermogen in elk kanaal en wekt vervolgens aan de ontvangzijde een signaal op met een overeenkomstig frequentiespectrum. De meeste huidige spraakbandcompressiesystemen werken nog steeds volgens hetzelfde principe ¹⁰⁾; zie fig. 8a en b. De resultaten van

net mogelijk is. Inderdaad verwacht elke telefoonabonnee beantwoord te worden door een menselijke stem, en niet door een machine die alleen woorden uitsprekt op een onpersoonlijke, eentonige manier.

Door deze onderzoeken is thans een grote hoeveelheid informatie met betrekking tot de spraakparameters beschikbaar. Waarschijnlijk zijn er twee oorzaken waardoor het tot nu toe niet gelukt is om een vocoder van hoge kwaliteit te construeren. Ten eerste wordt in ons gehoormechanisme gebruik gemaakt van een zeer groot aantal zenuwen, die voor het merendeel parallel gebruikt worden. De constructie van een enigszins natuurgetrouw elektrisch model zou zoveel circuits moeten bevatten dat het

⁹⁾ H. Dudley, *Remaking speech*, J. Acoust. Soc. Amer. II, 169-177, 1939.

¹⁰⁾ F. H. Slaymaker, *Bandwidth compression by means of vocoders*, IRE Trans. on audio AU-8, 20-26, 1960.

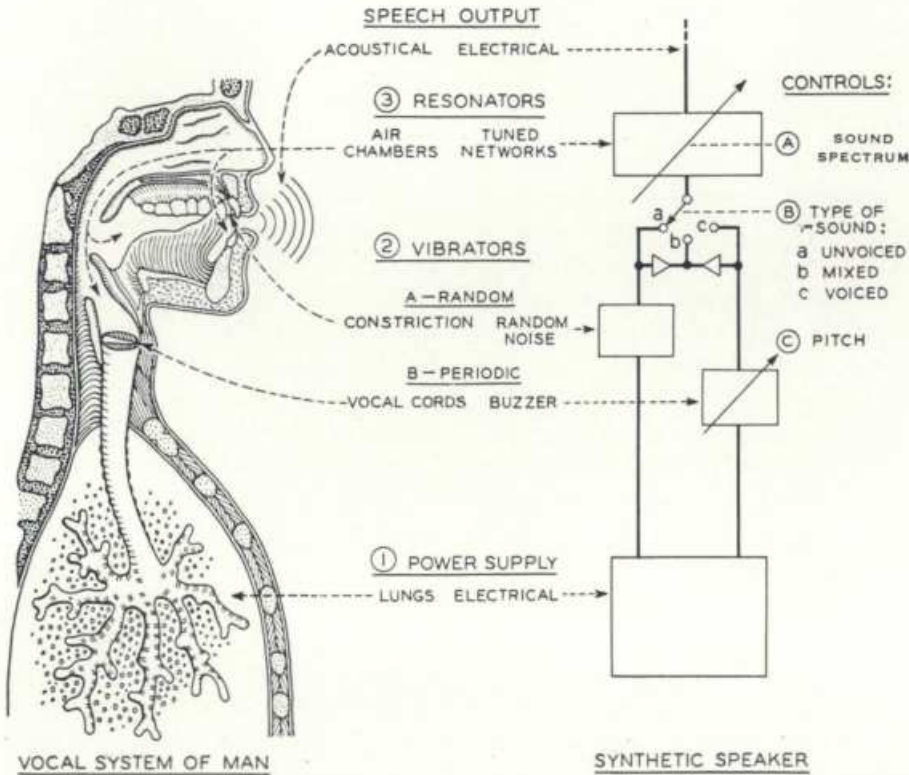


Fig. 7. Vergelijking van de productie van synthetische spraak met de menselijke spraakorganen. (Uit H. Dudley, R. R. Riesz en S. S. A. Watkins, A synthetic speaker, J. Franklin Inst. 227, 739-764, 1939 (fig. 5).)

uit technisch oogpunt weinig aantrekkelijk is. (Misschien kan de vooruitgang in microminiaturisatie ons hierbij van dienst zijn.) Ten tweede echter stoten we op het veel ernstiger probleem dat, hoewel de spraakklanken en de werking van het oor zeer nauwkeurig zijn geanalyseerd, het helaas niet bekend is hoe de ontvangen signalen worden gecombineerd en geïnterpreteerd door het menselijk brein. Zolang dit niet bekend is, zal de ontwikkeling van nieuwe vocoders op min of meer tastende wijze worden voortgezet (wat het vinden van een oplossing evenwel niet uitsluit). Het hoeft ons overigens

niet te verwonderen dat de analyse van echte spraak veel moeilijker is voor een machine dan voor een menselijke waarnemer. Pas een beter begrip van biologische processen zoals perceptie en adaptatie zal tot efficiëntere methodes voor menselijke communicatie leiden. Deze problemen behoren feitelijk tot het meer algemene probleem van de herkenning van patronen: hoe moeten machines gebouwd worden die in staat zijn elementen van informatie zoals gedrukte letters, cijfers of de onderhavige akoestische patronen te herkennen en te identificeren? Dit is een vrij nieuw

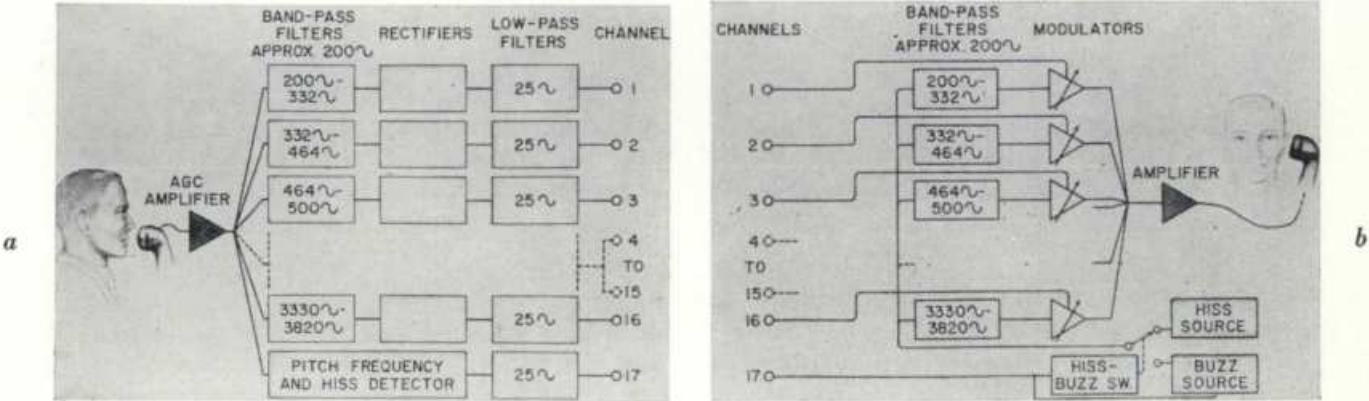


Fig. 8. Schema van de apparatuur in een „vocoder“-systeem. (Uit Slaymaker ¹⁰.)
a) Zendside, b) ontvangside.

terrein van onderzoek, waarbij men voor de oplossing van de problemen op de combinatie van mathematische, fysische en biologische onderzoekingen aangewezen zal zijn.

Stel nu dat men weet te ontdekken waaruit de informatie-overbrengende elementen in de spraak werkelijk bestaan en dat men hierop een spraakband-compressiesysteem kan baseren. Dan komt nog een typisch probleem naar voren: wat zal een spraakband-compressiesysteem doen met b.v. het geritsel van papier dat samen met de stem van de spreker in de microfoon terechtkomt? Men heeft het systeem geleerd slechts spraaksignalen te reproduceren, dus zal elke soort ruis in spraak worden omgezet. Dit zelfde effect ontmoet men overigens ook in experimenten met handbreedtecompressiesystemen voor televisie, waarbij ruis niet meer als ruis maar als een nieuw soort signaal gedemoduleerd wordt. Praktische bezwaren van dit type zullen de toe te passen compressieverhouding in vocoders van hoge kwaliteit altijd blijven begrenzen.

Voor de praktische toepassing van vocoders in de telecommunicatie bestaat mogelijk een voorlopige oplossing in het op natuurlijke wijze overbrengen van een klein gedeelte van het spraakspectrum met een aanvulling hiervan door middel van parameters die voor het overbrengen van het grootste deel van het spectrum zorgdragen. Men heeft inderdaad gevonden dat vooral de lage frequenties van 300 tot 800 Hz zich goed lenen voor een directe overbrenging van de spraak, wanneer dit wordt gecombineerd met een parametrische overdracht van de rest van de frequentieband. De signalen uit het eerstgenoemde frequentiegebied vormen dan een natuurlijke basis voor de gereconstrueerde spraaksignalen en het moeilijke probleem van de toonhoogtebepaling in de spraak wordt omzeild. De constructie van een vocoder wordt hierdoor veel eenvoudiger, maar de resulterende compressieverhouding is ook veel kleiner.

In weerwil van de bovengenoemde moeilijkheden bij vocoders moet worden toegegeven dat gedurende de laatste jaren belangrijke vorderingen gemaakt zijn met betrekking tot vocoders van lage kwaliteit. Wanneer de verstaanbaarheid, en niet de natuurlijkheid, het belangrijkste is, is het nu goed mogelijk spraaksignalen over te zenden door middel van slechts 2000 impulsen „1” of „0” per seconde. Bij militaire toepassingen kunnen deze impulsen opnieuw gecodeerd worden ten behoeve van de geheimhouding, en dan via het normale telefoonnet worden overgezonden. Dit is betrouwbaarder dan te trachten geheimhouding te bereiken door met het spraaksignaal in zijn oorspronkelijke vorm te manipuleren.

Compandors: gebruikmaking van de amplitudeverdeling in de spraak

In de voorafgaande voorbeelden hebben we gezien hoe de statistische eigenschappen van spraak, wat betreft tijd- en frequentieverdeling, kunnen worden gebruikt voor een vergroting van het aantal kanalen. Gezien van het standpunt van de ingenieur, is het de moeite waard te vragen wat men zou kunnen bereiken met de statistische eigenschappen van de amplitudeverdeling. Men vindt dan dat deze kennis in de eerste plaats gebruikt kan worden voor een betere reductie van de ruis. In het algemeen gesproken, wil dit zeggen dat het grote gebied van de in spraak of muziek voorkomende amplitudes tijdens het overbrengen tot een kleiner interval kan worden gecomprimeerd, om na de ontvangst weer te worden geëxpandeerd. Dit komt in hoofdzaak zwakke informatiesignalen ten goede, die anders in de ruis verloren zouden gaan. Apparaten voor dit doel, samengesteld uit een compressor en een daarbij behorende expander, worden compandors genoemd ¹¹⁾. Zij worden meer en meer toegepast bij telefooncircuits die anders waardeloos zouden zijn. Feitelijk is voor dit principe een niet-lineaire karakteristiek nodig, doch deze moet zo worden gebruikt dat er in het signaal geen niet-lineaire vervorming kan ontstaan. Op het eerste gezicht lijkt dit tegenstrijdig, doch men kan eraan voldoen door hierbij verschillende tijdconstanten te kiezen. Verder zijn er twee mogelijkheden: ofwel het signaal kan zelf worden gebruikt om het niet-lineaire mechanisme te besturen, ofwel hiertoe kan een afzonderlijk pilootsignaal worden benut. De eerste mogelijkheid wordt toegepast in normale compandors, waar de compressieverhouding betrekkelijk klein is, meestal 2 op 1, in dB-schaal. De tweede mogelijkheid — het gebruik van de pilootcompandor — kan worden toegepast met een zeer grote compressieverhouding en dit maakt transmissie mogelijk op verbindingen met een zeer hoog ruisniveau. Daar de werking van pilootcompandors onafhankelijk kan worden gemaakt van de sterkte van het ontvangen signaal, zijn deze laatste tegelijkertijd zeer geschikt voor het compenseren van „fading”.

Het ligt niet in de bedoeling in te gaan op de bijzonderheden van een compandor, maar het effect ervan zullen we toelichten aan de hand van het volgende voorbeeld. Als we aannemen dat de piekspanning in een spraaksignaal slechts $2 \text{ à } 3 \times$ zo groot is als de gemiddelde ruisspanning, is het duidelijk dat veel gedeelten van het spraaksignaal verloren zullen gaan in de ruis. Door een compandor te

¹¹⁾ N. Valentini, The dynamics compressor-expander (compandor) in telephony, Telettra no. 2, 12-22, sept. 1954.

gebruiken, is het mogelijk de ruisspanning min of meer evenredig met de amplitude van het spraaksignaal te laten afnemen, zodat ook de signalen met kleine amplitude — die vaak veel informatie bevatten — boven de ruis kunnen uitkomen. Inderdaad heeft men gevonden dat, wanneer een tegelijk met de spraak aanwezige ruis is gemoduleerd in hetzelfde ritme en in evenredigheid met de amplitude van de spraak, de verstaanbaarheid pas verloren gaat als de ruis- en de spraakspanningen ongeveer even groot zijn ¹²⁾.

Een belangrijk punt bij de ruisonderdrukking door middel van deze compandors is dat hier nagenoeg geen extra bandbreedte nodig is, zulks in tegenstelling tot de oudere methode van frequentiemodulatie, waar een evenredige vergroting van de bandbreedte wordt vereist. Dit betekent dat compandors in de toekomst ook zullen kunnen worden gebruikt om het aantal telecommunicatiekanalen bij radioverbindingen te vergroten.

Verder is de combinatie van een compandor met andere modulatiemethodes, zoals b.v. de impulscode-modulatie, zeer vruchtbaar gebleken. Hier is slechts de quantiseringsruis, en niet de ruis in de transmissieweg, van belang. Door de eerstgenoemde in het uitgangssignaal te reduceren, kan met een lagere impulsfrequentie worden volstaan. B.v. werd in verband met de reeds eerder genoemde deltamodulatie kort geleden door Greefkes in dit laboratorium gevonden dat het terugkoppelcircuit, dat reeds bij de deltamodulatie aanwezig is, tegelijkertijd de functie van een compandor kan vervullen ¹³⁾. In dat geval worden door middel van de opgewekte impulsreeks twee verschillende informatiesignalen uitgezonden; het ene houdt verband met de fijnstructuur van de spraaktrillingen en het andere met het niveau van de spraak. Onder verwijzing naar het vroeger genoemde model van een auto die over de weg gestuurd wordt, kunnen we zeggen dat de gevoeligheid van het stuurmechanisme daarbij wordt ingesteld op de gemiddelde kromming van de weg. Door middel van dit systeem van „continue deltamodulatie”, zoals het werd genoemd, is het mogelijk gebleken de benodigde impulsfrequentie te halveren van ca. 60 kHz tot 30 kHz, en zelfs bij de zeer lage impulsfrequentie van 16 kHz bleek nog een verandering van 20 dB in het niveau van het ingangssignaal te kunnen worden toegelaten.

Op deze manier worden compandors gebruikt voor een soort van „adaptatie”, die in grote trek-

ken overeenkomt met de adaptatie in biologische betekenis. Ze stelt ons in staat informatiesignalen van zeer uiteenlopende sterkte te verwerken, ongeveer op dezelfde wijze als de hoeveelheid binnentredend licht in het menselijk oog geregeld wordt door een adaptatieproces. Van deze biologische processen kunnen wij veel leren, b.v. wat de hierbij optredende tijdconstanten betreft.

Het onderzoek naar de verschillende aspecten van adaptatie en perceptie zal dan ook van grote betekenis kunnen zijn voor het ontwerp van toekomstige, optimale communicatiesystemen.

Compatibiliteit

In het laboratorium is aangetoond dat een groot aantal compandors kunnen worden gebruikt voor een vermindering van de ruis. Elk type heeft daarbij zijn eigen voordelen. Bij een vaste verbinding tussen twee punten is men vrij in de keuze hiervan. Moeilijker wordt het evenwel bij algemenere toepassingen. Men krijgt dan te maken met het probleem van de compatibiliteit (verenigbaarheid). Het is gewenst dat de meeste zenders en ontvangers met elkaar kunnen samenwerken zonder dat de apparatuur veel wijzigingen behoeft te ondergaan. Dit was nog betrekkelijk eenvoudig toen alleen amplitude- en frequentiemodulatie werden toegepast, doch bij het invoeren van nieuwe ideeën zijn de technische ontwikkelingen onderling zo verschillend geworden, dat het nastreven van compatibiliteit een bijna hopeloze taak is geworden. Dit is een van de belangrijkste oorzaken ervan dat de invoering van nieuwe verbeteringen in de praktijk vaak lang op zich laat wachten. De noodzaak om meer en betere communicatieverbindingen beschikbaar te stellen, zal ons echter in de naaste toekomst dwingen om van de bekende modulatieprincipes alleen de beste toe te passen ¹⁴⁾.

In verband met het zo juist genoemde punt van de compatibiliteit bestaat er een belangrijk probleem bij de radio-omroep. Hier wordt in de meeste zenders amplitudemodulatie toegepast, en alle ontvangers zijn dan ook voor de ontvangst van deze signalen ingericht. Het is echter al 40 jaar bekend dat enkelzijbandmodulatie de voorkeur verdient uit het oogpunt van zendvermogen en frequentie-eisen. Deze laatste methode wordt dan ook algemeen toegepast in verbindingen voor draaggolftelefonie. Hierbij is echter een iets ingewikkelder ontvanger nodig en dit heeft de toepassing van enkelzijbandmodulatie voor omroepdoeleinden in de weg gestaan. Verschillende

¹²⁾ F. de Jager en J. A. Greefkes, „Frena”, een systeem voor overbrenging van spraak bij hoge ruisniveaus, Philips techn. T. 19, 65-76, 1957.

¹³⁾ Belgisch octrooi no. 620450.

¹⁴⁾ G. Jacobs, Radio interference — suicide or challenge, IRE Trans. on radio frequency interference RFI-4, no. 2, 21-23, 1962.

oplossingen zijn reeds voorgesteld om een zodanig compatibel enkelzijbandsignaal op te wekken dat dit door alle normale ontvangers zou kunnen worden ontvangen, doch de daarbij aanwezige vervorming is als regel te groot voor een muziekweergave van hoge kwaliteit. Van Kessel e.a. in dit laboratorium hebben kort geleden een elegante oplossing voor dit probleem gevonden, die gebaseerd is op een zorgvuldige mathematische analyse, en waarbij een normale omroepzender slechts weinig veranderd behoeft te worden om enkelzijbandcomponenten van zodanige faze en amplitude te kunnen afgeven dat elke ontvanger in staat is de signalen zonder vervorming weer te geven ¹⁵⁾. Dit resulteert in een economischer gebruik van het beschikbare zendvermogen en een betere weergave van de hogere frequenties in elke normale ontvanger.

Televisie

Een ander gebied waar het de moeite waard is te zoeken naar de essentiële informatie is dat van de televisie. Hoewel televisiebeelden tweedimensioneel zijn, wordt de informatie hiervan punt voor punt overgebracht, en dit vereist de tamelijk grote bandbreedte van ca. 5 MHz. Deze bandbreedte (ruim voldoende voor 1000 telefoniekanalen) zou ons in staat stellen het gehele televisiebeeld 25 keer per seconde te veranderen — iets wat door een menselijke waarnemer noch opgemerkt noch gewaardeerd zou worden. Bekijkt men de statistische eigenschappen van een televisiesignaal, dan ziet men weer dat de meeste gedeelten voortdurend herhaald worden. Bij een reductie van de beschikbare informatie stuit men echter op de moeilijkheid dat de aandacht van de toeschouwer op elk willekeurig deel van het beeld gericht kan zijn, en dit maakt dat de beeldkwaliteit over het gehele beeldoppervlak voldoende hoog moet zijn.

Voor een reductie van de bandbreedte kan men ofwel de correlatie gebruiken die er bestaat tussen de elkaar in tijd of in plaats opvolgende signalen, ofwel men kan gebruik maken van de traagheid waarmee helderheidsveranderingen door het menselijk oog kunnen worden waargenomen. Verschillende systemen zijn reeds onderzocht, b.v. door Teer in dit laboratorium ¹⁶⁾. Enkele resultaten zijn gevonden op het gebied van kleurentelevisie. Hier bleek het b.v. mogelijk kleureninformatie toe te voegen zonder vergroting van de bandbreedte. In dat geval kan

een aantal signalen, welke de informatie betreffende de verschillende kleuren bevatten, gelijktijdig in dezelfde frequentieband worden overgezonden en is het mogelijk onderlinge storingsen daarbij te vermijden door van speciale frequentie- en faserelaties tussen de verschillende hulpdraaggolven gebruik te maken ¹⁷⁾. Dank zij de integrerende werking van het menselijk oog wekt het televisiebeeld dan de indruk van een natuurlijk beeld. Aangezien het systeem „compatibel” is, kan daarbij met een conventionele ontvanger nog steeds een goed beeld in zwart en wit verkregen worden.

Datatransmissie

Tot zover hebben we enkele moderne aspecten van de transmissie van continu variërende informatie-signalen als spraak, muziek of televisie bekeken. Gedurende de laatste tien jaar is echter een steeds groeiende belangstelling ontstaan voor de transmissie van telegrafiesignalen, speciaal in de vorm van snelle telegrafie of datatransmissie. Inderdaad is bij de voortschrijdende toepassing van rekenmachines, dataverwerkende apparatuur enz., een grote hoeveelheid digitale informatie aanwezig, die vaak over grote afstanden moet worden overgebracht. Door middel van de duizenden impulsen die per seconde via een telefoonverbinding kunnen worden overgezonden, is natuurlijk een veel grotere snelheid voor de overdracht van deze informatie mogelijk dan bij gewone telefoongesprekken het geval zou zijn.

Zo zien we dat het telefoonnet, dat oorspronkelijk ontworpen is voor de overdracht van spraak, meer en meer gebruikt wordt door machines die met elkaar praten in een digitaal alfabet. Als typisch voorbeeld kan hier een luchtvaartreserveringssysteem genoemd worden, waarbij vragen binnen één seconde beantwoord worden. In dit soort gevallen is betrouwbaarheid meestal een eerste vereiste, en daarom wordt hier vaak gebruik gemaakt van schakelingen voor foutendetectie en eventueel foutencorrectie. Juist zoals de redundantie in normale spraak een nuttige functie bleek te hebben voor betrouwbare overbrenging, zo kan men ook bij deze digitale informatie redundantie invoeren door controle-impulsen toe te voegen. Reeds is door Golay ¹⁸⁾, en uitvoeriger nog door Hamming ¹⁹⁾, opgemerkt dat men bij toepassing van speciale codes deze controle-impulsen niet alleen kan gebruiken voor fouten-

¹⁵⁾ Th. J. van Kessel, F. L. H. M. Stumpers en J. M. A. Uyen, A method for obtaining compatible single-sideband modulation, E.B.U. Rev. Part A, no. 71, 12-19, 1962.

¹⁶⁾ K. Teer, Investigations into redundancy and possible bandwidth compression in television transmission, Philips Res. Repts. 14, 501-556, 1959 en 15, 30-96, 1960.

¹⁷⁾ K. Teer, Colour television transmission; practical aspects of the two-sub-carrier system, Electronic and Radio Engr. 34, 280-286 en 326-332, 1957.

¹⁸⁾ M. J. E. Golay, Notes on digital coding, Proc. IRE 37, 657, 1949.

¹⁹⁾ R. W. Hamming, Error detecting and error correcting codes, Bell Syst. tech. J. 29, 147-160, 1950.

detectie, doch ook voor automatische fouten-correctie. Heden ten dage is er veel belangstelling voor de wetenschappelijke samenhang van deze foutencorrigerende codes, en het is een opmerkelijk feit dat vele ideeën die zijn ontstaan in een gebied van zuiver wetenschappelijk onderzoek, nl. de getal-lentheorie, hier een praktische toepassing vinden ²⁰⁾.

Op deze wijze vindt men bij de theorie van de modulatie een nauwe samenhang met het opslaan van informatie in geheugens, het hanteren van deze informatie in logische circuits, en het probleem deze handelingen op de meest effectieve manier uit te voeren. Opnieuw zien we dat de studie van de statistische eigenschappen in ons gebied doordringt, hoewel het nu niet gaat om statistiek van de over te zenden signalen, doch in de eerste plaats om de statistische eigenschappen van de transmissieweg.

Overigens heeft de overbrenging van impulsen via het normale telefoonnet zijn eigen problemen. Dit telefoonnet is ontworpen voor spraak, en vele van zijn typische bijzonderheden die voor spraakoverbrenging niet van het minste belang zijn (zoals de onderdrukking van zeer lage frequenties en de invloed van fasevervorming), blijken voor de overbrenging van impulsen funest te zijn.

Wanneer in deze dagen een nieuw telefoonnet zou worden aangelegd, zou men de eisen voor digitale transmissie zeker in aanmerking nemen. De grote investeringen in de reeds aangelegde telefoonverbindingen in de gehele wereld dwingen ons echter van de andere kant uit te werk te gaan. We moeten daarom zoeken naar modulatiemethodes die de overbrenging van deze digitale conversaties via spraakcircuits mogelijk maken, liefst op een meer efficiënte manier dan nu nog vaak gebeurt. Men kan zelfs zeggen dat de toekomstige mogelijkheid van het gebruik en het onderling doorverbinden van dataverwerkende apparatuur geheel afhangt van de ontwikkeling van betere modulatiemethodes, die een snellere en betrouwbaarder werking garanderen. Op dit gebied worden thans veel onderzoekingen verricht, b.v. op het punt van de bereikbare snelheid: in dit laboratorium is een systeem ontwikkeld om 4000 bits per seconde over te brengen, waarbij slechts een deel van de bij een normaal spraakcircuit beschikbare bandbreedte wordt gebruikt. De informatie wordt hierbij overgezonden met een snelheid die dicht bij het theoretische maximum ligt ²¹⁾ (fig. 9).

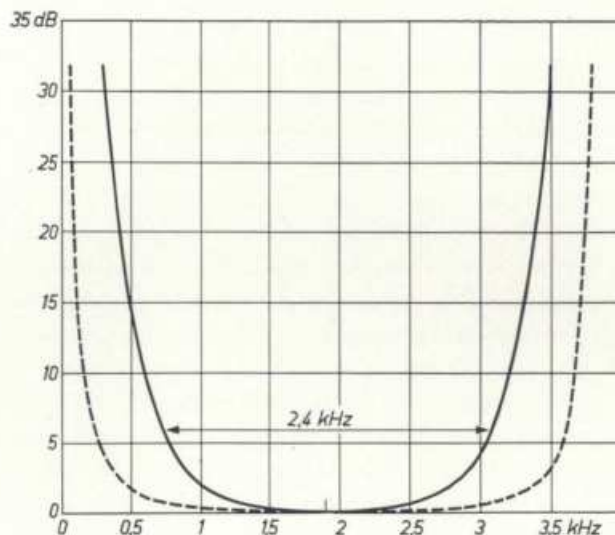


Fig. 9. Bandbreedte, gebruikt in het nieuwe systeem voor data-transmissie met een snelheid van 4000 bits/seconde, vergeleken met de bandbreedte van een normaal telefoonkanaal ²¹⁾.

Vele problemen moeten echter nog worden opgelost voor de specifieke moeilijkheden bij telefoonverbindingen zijn overwonnen. Sommige hiervan zijn verwant aan de problemen van de radiotransmissie, andere zijn van meer speciale aard. De grote en moeilijk te voorspellen fasevervormingen b.v., die men ontmoet bij doorschakelverbindingen in het telefoonnet, geven veel moeilijkheden. In dit geval zijn de storende spanningen afkomstig van het signaal zelf, en is het niet mogelijk de signaal-ruisverhouding te verbeteren door van een groter signaalvermogen uit te gaan, daar immers de storingen evenredig zouden toenemen. Dus moeten we blijven uitzien naar andere middelen, die efficiënt zijn en liefst ook niet te gecompliceerd.

Een blik in de toekomst

Vergelijken we de modulatie van vandaag met die van 50 jaar geleden, dan zien we dat we nu veel meer kunnen doen, doch dat we ook voor veel meer problemen gesteld worden. Vraagt men naar de ontwikkeling in de komende 50 jaar, dan luidt het antwoord dat deze vermoedelijk gekenmerkt zal worden door twee verschillende aspecten. Ten eerste is te verwachten dat de op het gebied van de informatietheorie bereikte theoretische resultaten meer in de praktijk zullen worden toegepast. Waarschijnlijk zal dit leiden tot systemen die dicht bij de grens van het theoretisch mogelijke liggen, en waarbij met een grotere betrouwbaarheid, en met een kleiner vermogen respectievelijk frequentieband, gewerkt kan worden dan bij de meeste huidige systemen. (In communicatie via satellieten b.v. is dit zeer urgent. Door gebruik te maken van speciale versterkers — masers —

²⁰⁾ W. W. Peterson, *Error-correcting codes*, M.I.T. Press/Wiley, New York 1961.

²¹⁾ F. de Jager en P. J. van Gerwen, CO-modulation, a new method for high-speed data transmission, *IRE Trans. on information theory* IT-8, S 285-S 290, 1962 (no. 5).

heeft men hier nl. reeds bijna de grens van de fysisch mogelijke signaal-ruisverhouding bereikt.) Het tweede te verwachten aspect is de nauwere samenwerking tussen mens en machine, in dier voege dat de mogelijkheden van regeling en aanpassing in elektrische systemen meer in overeenstemming met het menselijke zenuwstelsel zullen worden gebruikt. Voor het ontwerpen van deze zichzelf aanpassende systemen zullen evenwel meer resultaten nodig zijn uit het onderzoek van de perceptie (zoals b.v. door Schouten en zijn medewerkers wordt verricht in het „Instituut voor Perceptie Onderzoek”²²⁾). De combinatie van de resultaten in deze twee gebieden: informatietheorie en perceptie, zal waarschijnlijk het voornaamste kenmerk zijn van de toekomstige ontwikkeling. Tot nu toe is de combinatie van deze twee een beetje stroef gegaan, wat waarschijnlijk zijn oorzaak vindt in het feit dat de problemen en de resultaten in het eerste gebied meestal als „exact” worden beschouwd, terwijl die in het tweede gebied een meer „subjectieve” aard hebben. Wanneer er echter genoeg mensen te vinden zijn die in beide gebieden zijn geïnteresseerd, zal men in de toekomst revolutionaire ontwikkelingen op het gebied van modulatiesystemen kunnen verwachten.

Gedurende vele jaren hebben ingenieurs elektrische signalen die informatie bevatten, overgezonnen zonder zich af te vragen wat voor soort informatie hierin werkelijk aanwezig was. Thans tracht men de informatie-overbrengende elementen hierin

te analyseren. Dit is niet slechts een kwestie van academische belangstelling. De noodzaak, bestaande modulatiesystemen te verbeteren, is in verband met de snelle uitbreiding van de telecommunicatie zo urgent dat ingenieurs gedwongen worden deze fundamentele grondslagen van de menselijke communicatie zorgvuldiger te bestuderen. De oplossing van deze problemen vereist echter een uitvoerig mathematisch, fysisch en biologisch onderzoek, tezamen met de kunst om „goed te raden”.

Het grote aantal communicatiekanalen dat zich over de gehele wereld uitstrekt (en soms zelfs andere planeten bereikt), kan men zien als een geweldig zenuwstelsel dat de mensheid in slechts een halve eeuw tijds heeft opgebouwd en dat hoe langer hoe intensiever zal worden gebruikt. Door middel van de modulatietheorie trachten wij nu te ontdekken hoe het gebruik van deze zenuwen zo doeltreffend mogelijk kan zijn.

Samenvatting. In dit artikel wordt beschreven hoe de steeds toenemende eisen aan communicatieverbindingen geleid hebben tot de invoering van nieuwe modulatiemethodes. Na een beschouwing van frequentiemodulatie, impulsmodulatie en deltamodulatie wordt speciaal aandacht geschonken aan die systemen welke in belangrijke mate gebruik maken van de statistische eigenschappen van informatiesignalen: bandbreedtecompressie, compandors. Het moderne onderzoek is hier gericht op het vinden van de informatie-overbrengende elementen in deze signalen. Ten slotte worden enkele problemen beschouwd die samenhangen met compatibiliteit en met de transmissie van digitale informatie.

Men mag verwachten dat de combinatie van de resultaten van informatietheorie en perceptieonderzoek in de toekomst tot steeds doeltreffender modulatiemethodes zal leiden.

²²⁾ J. F. Schouten, Het Instituut voor Perceptie Onderzoek, Philips techn. T. 24, 337-340, 1962 (no. 11/12).

BIJDRAGEN VAN HET PHILIPS' NATUURKUNDIG LABORATORIUM TOT DE CHEMIE VAN DE VASTE STOF

door H. J. VINK *).

54-16

In de afgelopen veertig jaar hebben onderzoekers in het Philips' Natuurkundig Laboratorium zich beziggehouden met verschillende gebieden van de chemie, zoals colloïdchemie, oppervlakverschijnselen, elektrochemie, organische chemie, fotochemie, analytische chemie, biochemie, de scheikunde van de glasachtige toestand en de chemie van de vaste stof. Het gebied van de chemie van de vaste stof in het bijzonder is uitvoerig onderzocht. De opening van enkele nieuwe gebouwen van dit laboratorium lijkt een geschikte gelegenheid voor een terugblik. Een terugblik om nog eens de problemen te beschouwen die deze onderzoekers zich hebben gesteld, de methodes na te gaan die ze hebben gebruikt om deze problemen op te lossen en de resultaten te waarderen die zijn bereikt.

De keuze van de verschillende gebieden van onderzoek wordt natuurlijk bepaald door het feit dat dit laboratorium verbonden is aan een elektronische industrie. De chemie heeft altijd een belangrijke rol gespeeld in de ontwikkeling van de elektrotechnische en elektronische industrie, maar in de laatste 30 jaar is het grote belang van de chemie voor de elektronische industrie bijzonder duidelijk geworden. Het bereiden en beheersen van materialen is altijd van belang geweest, maar de manier waarop de scheikunde op het ogenblik in staat is materialen te ontwikkelen met nieuwe combinaties van bekende of met tot nu toe onbekende fysische eigenschappen, maakt haar ten enenmale voor de elektronische industrie onontbeerlijk. Men gaat daarom niet te ver wanneer men stelt dat de scheikunde ten grondslag ligt aan de snelle uitbreiding en het toenemende belang van de elektronische industrie.

In dit overzicht zal evenwel het technisch belang van de verschillende studies, in dit laboratorium uitgevoerd, slechts zeer oppervlakkig behandeld worden. Een algemener gezichtspunt zal worden gekozen, nl. het verband tussen fysische en chemische eigenschappen en de nauwkeurige chemische samenstelling.

De fysische en chemische eigenschappen van een stof hangen van zijn chemische samenstelling af. Aan de andere kant kunnen de elektrische, optische, magnetische en chemische eigenschappen soms zeer geschikt gebruikt worden om deze chemische samenstelling te bepalen. Daarom kan een samenspel van

fysische en chemische methodes dikwijls tot een min of meer volledig begrip voeren van het verband tussen de fysische en chemische eigenschappen enerzijds en de juiste chemische samenstelling anderzijds. Dit samenspel eist niet alleen een nauwe samenwerking tussen chemici en fysici, maar vergt ook van beiden een zeker vermogen om elkaars „taal” te verstaan, elkaars methode en elkaars problemen.

Het onderzoek in dit gebied wordt grotendeels gericht door twee vragen:

- 1) Welke kristallografische plaatsen, in wat voor kristalstructuren, moeten bezet worden door welke atomen of groepen van atomen, in wat voor valentie, om een bepaalde „gewenste” combinatie van fysische en chemische eigenschappen op te leveren?
- 2) Is het mogelijk om zekere groepen van verbindingen en hun bereidingswijzen zodanig te ontwikkelen dat gewenste concentraties van atomen, ieder in de geschikte valentietoestand, inderdaad de juiste soort kristallografische plaatsen bezetten, zodat in deze materialen gewenste combinaties van fysische en chemische eigenschappen op reproduceerbare wijze beheerst kunnen worden?

In dit overzichtsartikel zullen deze twee vragen hoofdzakelijk chemisch benaderd worden en zal de stof worden verdeeld in vier hoofdstukken, nl.:

- a) kristalchemie,
- b) inwendige ladingcompensatie,
- c) gassen en metalen,
- d) thermodynamica.

Kristalchemie

Kationenverdeling in spinellen; experimentele bepaling hiervan

Een onderzoek dat het beginpunt bleek te zijn van een hele reeks van studies werd in de jaren dertig door Verwey ^{1,2,3,4,5}) begonnen **). De toen bekende oxydes van ijzer en van andere elementen van de overgangsrееks vertonen een reeks van interessante elektrische en magnetische eigenschappen. Speciaal vanwege het feit dat sommige van de magnetische oxydes ook isolatoren bleken te zijn, leek het de moeite waard een onderzoek te beginnen van deze of verwante oxydische verbindingen (Snoek ⁶)). Al spoedig namen in dit onderzoek de spinellen een belangrijke plaats in. Een groot deel

*) Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

**) De aangehaalde literatuur vindt men in een lijst aan het einde van het artikel.

van deze spinellen kan worden beschreven met de algemene formule XY_2O_4 . De spinelstructuur is kubisch en kan gekarakteriseerd worden door een kubische, bijna-dichtste stapeling van zuurstofionen (O^{2-}) waartussen de metaalionen liggen op bepaalde plaatsen die of tetraëdrisch omringd zijn door vier O^{2-} -ionen of octaëdrisch door zes O^{2-} -ionen (in het laatste geval vormen de middelpunten der O^{2-} -ionen de toppen van een iets verwrongen octaëder; fig. 1). De pakking van de O^{2-} -ionen kan worden beschreven

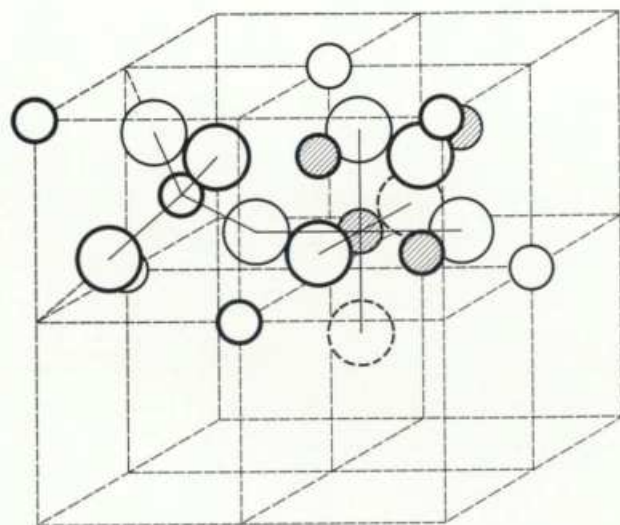


Fig. 1. Eenheidscel van de spinelstructuur; slechts twee octanten zijn getekend. De gestreepte cirkels behoren tot andere octanten. De getrokken lijnen duiden de viervoudige en zesvoudige omringing aan van de respectieve metaalionplaatsen. Grote cirkels: zuurstofionen; kleine gestreepte cirkels: metaalionen op een octaëdrische plaats; kleine niet-gestreepte cirkels: metaalionen op een tetraëdrische plaats. De figuur is getekend voor $u = 0,375$.

door een parameter u . Wanneer $u = 0,375 (= 3/8)$ vormen de zuurstofionen een ideale kubisch-dichtste stapeling. Meestal is de waarde van u iets groter dan 0,375.

De verdeling van de kationen over de voor hen beschikbare plaatsen kan zijn:

- „Normaal”, met X op de tetraëderplaatsen en $2Y$ op de octaëderplaatsen. Dit kan worden geformuleerd door $X[Y_2]O_4$, waarbij de haken kationen op de octaëderplaatsen aanduiden.
- „Omgekeerd”, $Y[XY]O_4$.
- „Gemengd”, $X_xY_{1-x}[X_{1-x}Y_{1+x}]O_4$, waarbij $0 < x < 1$.

De metaalionen die met zuurstof een spinelstructuur kunnen vormen, moeten stralen hebben tussen 0,5 en 1,0 Å, maar daar er nauwelijks beperkingen schijnen te zijn betreffende de valentie, bestaat er een groot aantal spinellen.

Het bleek spoedig dat de magnetische en de elektrische eigenschappen en hun combinatie sterk afhangen van de verdeling der kationen over hun twee

soorten plaatsen. Het is daarom van belang te weten of een mogelijke voorkeur voor een van de twee soorten plaatsen in verband kan worden gebracht met de soort en de waardigheid van het ion. Het programma was dus, eerst experimenteel voor een aantal spinellen na te gaan hoe de ionen waren verdeeld, en vervolgens een verklaring voor deze experimentele feiten te geven, zodat voorspellingen zouden kunnen worden gedaan omtrent de kationenverdeling en daardoor over de fysische eigenschappen van andere spinellen. Met betrekking tot het eerste deel van dit programma moesten niet alleen binaire spinellen onderzocht worden maar ook ternaire of quaternaire spinellen, omdat op deze manier de relatieve voorkeur van de verschillende ionen voor een speciale plaats kon worden vastgesteld.

Röntgendiffractie ligt natuurlijk voor de hand als een middel om dit vraagstuk te bestuderen. De verdeling van de kationen in een aantal spinellen is inderdaad op deze manier bepaald door speciaal de verhouding te vergelijken van paren van reflexies die gevoeliger zijn voor een verandering in de verdelingsparameter dan voor een verandering in u . Echter ten gevolge van de kleine verschillen in de verstrooiende vermogens tussen metaalionen van de eerste overgangsrееks of tussen de ionen van hetzelfde metaal in een verschillende waardigheid (b.v. Fe^{2+} en Fe^{3+}) kan deze methode alleen voor een beperkt aantal gevallen gebruikt worden. Voor andere spinellen kan de studie van elektrische en/of magnetische eigenschappen dikwijls gebruikt worden om de kationenverdeling te bepalen. Dit is een voorbeeld van het in de inleiding genoemde feit dat fysische eigenschappen, die beheerst moeten worden door een juiste chemische samenstelling, op hun beurt kunnen helpen bij de bepaling van deze chemische samenstelling. Het elektrisch geleidingsvermogen b.v. werd gebruikt om de ionenverdeling vast te stellen in Fe_3O_4 . Waar zitten de Fe^{2+} - en Fe^{3+} -ionen in deze stof^{7,8)}? Het spinel Fe_3O_4 heeft een zeer groot elektronisch geleidingsvermogen, van de orde van $10^2 \Omega^{-1}cm^{-1}$ bij kamertemperatuur. Nu was het bekend dat stoffen zoals Cu_2O die, wanneer ze zuiver zijn, een hoge weerstand vertonen, een aanmerkelijk hoger elektronisch geleidingsvermogen verkrijgen door een kleine afwijking van de stoichiometrie, b.v. ten gevolge van oxydatie. Dit was door Wagner en medewerkers verklaard met de veronderstelling dat in geoxydeerd Cu_2O niet alleen Cu^+ -ionen aanwezig zijn, maar ook Cu^{2+} -ionen. Ten gevolge van de aanwezigheid van ionen van hetzelfde metaal in een verschillende valentietoestand zou dan een elektronen-geleidingsvermogen mogelijk zijn

doordat het elektronentransport eenvoudig kon geschieden door uitwisseling van valentie-elektronen volgens het schema:



Verwey en De Boer^{7,8)} verklaarden nu het elektronische geleidingsvermogen van Fe_3O_4 door aan te nemen dat het de inverse spinelstructuur bezit, nl. $\text{Fe}^{3+}[\text{Fe}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$, en niet de normale structuur $\text{Fe}^{2+}[\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$. Bij de inverse structuur bezetten inderdaad ijzerionen van verschillende waardigheid één soort kristalplaatsen (octaëdrisch), en deze situatie zal dus meer overeenkomen met die in ge-oxydeerd Cu_2O dan het geval is bij een normale spinelstructuur, waar Fe^{2+} - en Fe^{3+} -ionen verschillende kristallografische plaatsen bezetten, nl. respectievelijk tetraëdrische en octaëdrische.

Een andere fysische eigenschap die dikwijls kan worden gebruikt, is de bepaling van de verzadigingsmagnetisatie bij 0 °K. De theorie van Néel van het ferrimagnetisme postuleert een sterke negatieve magnetische wisselwerking (TO) tussen ionen op tetraëdrische (T) en op octaëdrische plaatsen (O), en een zwakke negatieve TT- en OO-wisselwerking. In eenvoudige gevallen, nl. waar de TO-wisselwerking overheerst, is het mogelijk de verzadigingsmagnetisatie (σ) bij 0 °K, uitgedrukt in bohrmagnetonen (μ_B) per formule-eenheid, uit te rekenen door eenvoudig de sommen van de magnetische momenten van de ionen op de T-plaatsen af te trekken van die op de O-plaatsen of omgekeerd. Als voorbeeld zullen hier de spinellen MgFe_2O_4 en NiFe_2O_4 behandeld worden. Het onderzoek met behulp van röntgendiffractie had opgeleverd dat deze beide spinellen als invers beschouwd moesten worden: $\text{Fe}^{3+}[\text{Mg}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ en $\text{Fe}^{3+}[\text{Ni}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$. De nauwkeurigheid van deze bepalingen was echter niet zo groot. Het was daarom van belang de verzadigingsmagnetisatie van deze verbindingen te bepalen om op deze manier de nogal vage gegevens van de röntgendiffractiemeting te controleren. Onder toepassing van de regels van Néel en gebruik makend van de veronderstelling dat deze verbindingen inderdaad inverse spinellen zijn, kunnen de verzadigingsmagnetisaties van deze verbindingen berekend worden; men vindt $\sigma = 0$ voor $\text{Fe}^{3+}[\text{Mg}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ en $\sigma = \mu_{\text{Ni}^{2+}} = 2\mu_B$ voor $\text{Fe}^{3+}[\text{Ni}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$. De gevonden waarden waren echter respectievelijk $1,1\mu_B$ en $2,3\mu_B$.

Nu kon de waarde van $\sigma = 1,1\mu_B$ voor MgFe_2O_4 veranderd worden door verschillende warmtebehandelingen toe te passen. Snelle afkoeling vanaf 1250 °C deed b.v. de waarde van σ toenemen tot $1,4\mu_B$. Gorter⁹⁾ verklaarde dit door aan te nemen dat Mg-ferriet in werkelijkheid een gemengde kationen-

verdeling vertoont, nl. $\text{Fe}^{3+}_x\text{Mg}^{2+}_x[\text{Mg}^{2+}_{1-x}\text{Fe}^{3+}_{1+x}]\text{O}_4^{2-}$, met respectievelijk $x = 0,11$ en $0,14$. Dezelfde verklaring evenwel kan niet toegepast worden voor Ni-ferriet. De verzadigingsmagnetisatie daarvan verandert namelijk niet door verschillende warmtebehandelingen. Gorter moest daarom aannemen dat voor Ni-ferriet $x = 0$ is, en verder dat het magnetisch moment van het Ni^{2+} -ion ook een baanbijdrage heeft en daardoor een totaal moment van $2,3\mu_B$. Deze baanbijdrage aan het totale moment van het Ni^{2+} -ion is later ook met behulp van andersoortige experimenten vastgesteld. Deze eenvoudige gevallen worden hier nog eens naar voren gebracht om aan te tonen hoe voorzichtig men moet zijn als men fysische verschijnselen wil interpreteren met behulp van chemische formules.

Het feit dat 1) ionen kunnen voorkomen in meer dan één (onbekende) valentietoestand, 2) de kationenverdeling in ternaire spinellen beschreven moet worden door twee parameters x en y , en 3) de verdunning door de niet-magnetische ionen op een onbekende wijze de wisselwerking tussen de magnetische ionen beïnvloedt, maakt het duidelijk dat voor nog ingewikkelder gevallen inderdaad de uiterste voorzichtigheid in acht genomen moet worden.

Kationenverdeling in spinellen; theoretische verklaring

Romeijn^{10,11)}, Gorter^{12,13,14)} en Blasse¹⁵⁾ bereidden een groot aantal binaire, ternaire en quaternaire spinellen en bestudeerden de verdeling van de kationen gebruik makend van bovengenoemde methodes. Hun uitkomsten bleken enorm gecompliceerd te zijn. Dit is echter niet zeer verrassend, daar voor de theoretische verklaring van deze kationenverdeling een groot aantal verschillende soorten energieën in rekening gebracht moet worden. In de loop van de jaren heeft men de volgende effecten, die bijdragen tot de roosterenergie van spinellen, in de beschouwingen betrokken: a) elektrostatische krachten, b) afstoting volgens Born, c) ordening, d) individuele voorkeur van sommige kationen om door een speciale configuratie van zuurstofionen omringd te zijn, e) kristalveldeffecten, f) „ligand-field“-effecten en g) polarisatie.

Van de bijbehorende energieën kunnen alleen de coulombenergie^{16,17)} en de ordeningsenergie¹⁸⁾ bij bepaalde veronderstellingen met een zekere nauwkeurigheid uitgerekend worden (Verwey, Heilmann, De Boer en Van Santen). De coulombenergie hangt echter af van de waarde van de zuurstofparameter u en de lengte van de eenheidsceel, die beide op hun beurt van de kationenverdeling afhangen, en dit in een dergelijke mate dat het in feite

onmogelijk blijkt te zijn om een verdeling van kationen ten gevolge van dit elektrostatistische effect alleen te voorspellen. Ook geometrische overwegingen, die berekeningen van de afstotingsenergie volgens Born moeten vervangen, leiden niet tot enige zekere conclusie. Het bleek verder dat de ordeningsenergie een aanzienlijk deel van de coulombenergie uit kon maken voor die gevallen waar een deelrooster, het tetraëdrische en/of het octaëdrische, door ionen bezet is die in lading verschillen. Dit betekent dat in dit soort spinellen er een neiging moet zijn om superstructuren te vormen. In het algemeen zullen de superstructuren vergezeld gaan van een roostervervorming. Inderdaad zijn er in enkele gevallen zulke superstructuren gevonden: $\text{Fe}^{3+}[\text{Fe}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ (19), $\text{Fe}^{3+}[\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{1.5}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ (20), $\text{Fe}^{3+}[\text{V}_{1/3}\text{Fe}_{5/3}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ (21), $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}^{3+}[\text{Cr}_2^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ (14) en $\text{In}_{2/3}\text{V}_{1/3}[\text{In}_{2/3}^{3+}\text{S}_4^{2-}]$ (22), waar V het symbool voorstelt voor een vacature op een octaëdrische of een tetraëdrische plaats. Gezien de grote ordeningsenergie, zijn weliswaar de overgangstemperaturen van de geordende fase naar de wanordelijke fase voor deze verbindingen veel te laag; Van Santen (23) heeft er echter op gewezen dat in ionenkristallen het energieverval tussen de ordening over lange afstanden en die over korte afstanden betrekkelijk klein is ten gevolge van het feit dat de coulombkrachten over lange afstanden werken. Dit betekent dat de overgangstemperatuur laag zal zijn en dat boven deze overgangstemperatuur nog een behoorlijke mate van ordening over korte afstanden zal bestaan.

Reeds Verwey en Heilmann wezen erop dat naast deze elektrostatistische effecten ook met een individuele ordeningsvoorkeur van sommige kationen rekening gehouden moet worden. Zo hebben b.v. de ionen Zn^{2+} , Cd^{2+} , Ga^{3+} , In^{3+} (en Ge^{4+}) de neiging om zich te omringen met vier anionen (sp^3 -hybridisatie).

Daar komt nog bij dat, zoals Van Santen en Van Wieringen (24) en Romeijn (11) veronderstelden, het gedrag van ionen van metalen van de overgangsrEEKS, met gedeeltelijk gevulde elektronenschillen, zoals Ti^{3+} , V^{3+} , Sr^{3+} , Mn^{4+} , Mn^{3+} , Fe^{3+} , Mn^{2+} , Co^{3+} , Fe^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} , mede bepaald zal worden door energiewinst ten gevolge van baanopsplitsing door het kristalveld.

Andere onderzoekers hebben getracht dit laatste effect min of meer kwantitatief te berekenen. Uit hun berekeningen bleek dat ionen met $3d^5$ - en $3d^{10}$ -configuratie (Mn^{2+} , Zn^{2+}) in het geheel geen voorkeur voor een bepaalde plaats zouden vertonen, terwijl ionen met $3d^3$ - en $3d^8$ -configuratie (Cr^{3+} en Ni^{2+}) een zeer grote voorkeur voor de octaëdrische plaatsen zouden hebben, het laatste in goede over-

eenstemming met de experimentele gegevens. Het is echter bijzonder onbevredigend dat de verdeling van de kationen zou worden beheerst door energieën die op zijn hoogst (Cr^{3+} : 40 kcal/mol) waarden hebben die minder dan 1% zijn van die van de coulombenergieën.

Blasse (15) maakte gebruik van de „ligand-field“-theorie, een methode die de individuele neiging tot covalente binding van speciale ionen en de kristalveldstabilisatie in zich verenigt. Zijn resultaten verschillen iets van de zojuist genoemde: ionen met $3d^3$ -configuratie hebben een voorkeur voor octaëdrische plaatsen, ionen met $3d^5$ -, $3d^6$ -, $3d^7$ -, $3d^9$ - of $3d^{10}$ -configuratie hebben een voorkeur voor tetraëdrische plaatsen, terwijl ionen met $3d^0$ -, $3d^1$ -, $3d^2$ -, $3d^4$ - of $3d^8$ -configuratie geen enkele voorkeur vertonen. Zijn resultaten zijn alleen kwalitatief. Het is daarom niet mogelijk de overeenkomstige energieën te vergelijken met die van de coulombenergieën. Het is echter redelijk om aan te nemen dat zij groter zullen zijn dan de energieën ten gevolge van de kristalveldstabilisatie alleen, maar dat zij weer klein zullen zijn vergeleken met de elektrostatistische energie.

Blasse heeft ook de polarisatie van de anionen in de beschouwing opgenomen. Hij kon experimenteel aantonen dat polarisatie van de zuurstofionen ten gevolge van het feit dat deze asymmetrisch omringd kunnen zijn door kationen met een verschillende lading, een beslissende invloed kan hebben op de verdeling van deze kationen. Vanuit elke andere overweging moet men van b.v. $\text{Fe}^{3+}\text{Ni}^{2+}\text{Rh}^{3+}\text{O}_4^{2-}$ verwachten dat het de configuratie $\text{Fe}^{3+}[\text{Ni}^{2+}\text{Rh}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$ zal hebben. In werkelijkheid echter zit een deel van de Ni^{2+} -ionen op tetraëdrische plaatsen. Op deze manier wordt namelijk de asymmetrie in de omhulling van de zuurstofionen wat betreft de lading vergroot en is er dus energiewinst ten gevolge van polarisatie.

Kationenverdeling in spinellen; „molecular engineering“

De theoretische verklaring van de verdeling van kationen in spinellen laat dus nog veel te wensen over. Toch moet gezegd worden dat de chemicus nu voldoende experimentele gegevens en theoretische beschouwingen tot zijn beschikking heeft om „molecular engineering“ in deze kristalstructuur uit te voeren. Op deze manier kon een groot aantal producten ontwikkeld worden die verschillen in beginpermeabiliteit, verzadigingsmagnetisatie, elektrische weerstand, elektrische verliezen, magnetische verliezen, enz. Het bleek dat voor alle spinellen het produkt van de statische beginpermeabiliteit en de dispersiefrequentie vrijwel constant is (betrekkende

van Snoek²⁵). Wij zullen dit alles hier niet uitvoerig behandelen, maar slechts één voorbeeld geven waardoor men op eenvoudige wijze een begrip van de „molecular engineering” in dit soort stoffen kan krijgen. ZnFe_2O_4 ($\text{Zn}^{2+}[\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$) heeft een totaal magnetisch moment gelijk aan nul. Indien nu van deze stof mengkristallen worden gemaakt met NiFe_2O_4 ($\text{Fe}^{3+}[\text{Ni}^{2+}\text{Fe}^{3+}]\text{O}_4^{2-}$), dan zullen deze mengkristallen bij niet te grote concentratie van zinkferriet grotere magnetische momenten hebben dan zuiver nikkelferriet²⁶). Overeenkomstig de bovengenoemde regels zullen we nl. in de mengkristallen de volgende verdeling van kationen aantreffen:



die tot een verzadigingsmagnetisatie per molecuul van

$$\sigma = (1-x)\mu_{\text{Ni}^{2+}} + 2x\mu_{\text{Fe}^{3+}}$$

aanleiding zal geven. Dit is eveneens het geval wanneer zinkferriet mengkristallen vormt met andere spinellen (fig. 2). Voor hogere concentraties verdwijnt dit effect. De verdunning met de niet-magnetische zinkionen op de tetraëdrische plaatsen maakt dan dat de TO-wisselwerking klein wordt vergeleken met OO- en TT-wisselwerkingen.

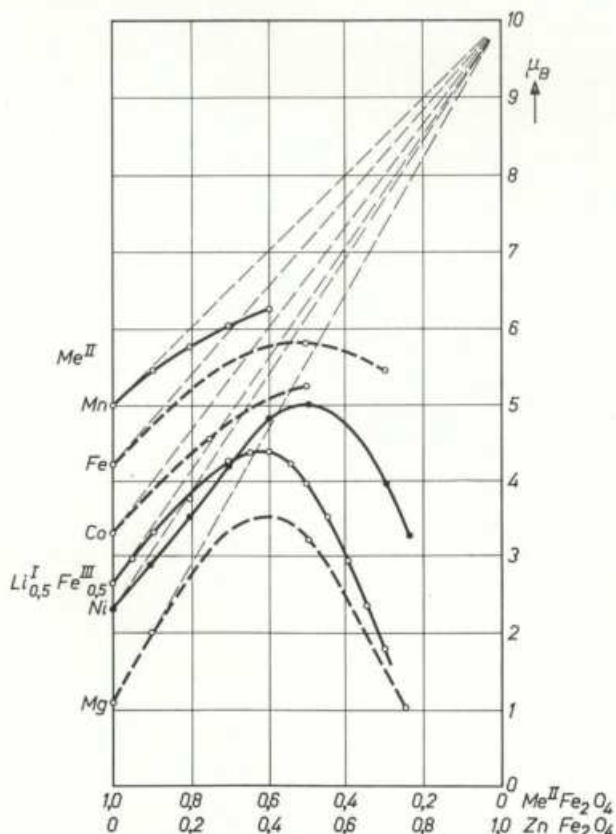


Fig. 2. De verzadigingsmagnetisatie in bohrmagnetonen (μ_B) per „molecuul” voor mengkristallen van Zn-ferriet met andere ferrieten.

Hexagonale en trigonale ferrieten; bepaling van hun kristalstructuren en van hun samenstelling

Bij uitbreiding van dit onderzoek van ferrieten werd een belangwekkende groep van nieuwe verbindingen gevonden in het systeem $\text{BaO} - \text{MeO} - \text{Fe}_2\text{O}_3$, waarbij Me een tweewaardig metaal voorstelt zoals Fe, Mn, Co, Ni, Zn en Mg. Nadat het materiaal **M** (zie fig. 3) was gevonden, werd het uitvoerig onderzocht door Went, Rathenau, Gorter en Van Oosterhout²⁷). Bij pogingen om monokristallen van deze verbinding **M** te maken, ontdekten Braun en Wijn^{28,29}) een andere verbinding, **W** genoemd. Deze vondst leidde tot het uitvoerige onderzoek, met name door Braun, Jonker en Wijn^{30,31,32,33}), van het genoemde systeem $\text{BaO} - \text{MeO} - \text{Fe}_2\text{O}_3$. De bedoelde ferrieten kristalliseren alle in hexagonale kristalstructuren. De samenstelling van deze ver-

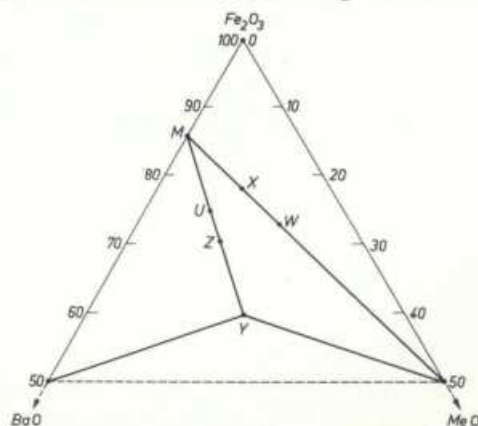


Fig. 3. Deel van het fazendiagram $\text{BaO} - \text{MeO} - \text{Fe}_2\text{O}_3$.

bindingen wordt weergegeven door de punten **M**, **W**, **X**, **Y**, **Z** en **U** in fig. 3 en kan worden voorgesteld door de formules:



De bereiding van deze stoffen voert dikwijls tot een mengsel van een aantal verbindingen. Met behulp van de gebruikelijke chemische methodes zou het daardoor onmogelijk geweest zijn de juiste samenstelling te vinden, ja men had zelfs het bestaan van deze verbindingen niet kunnen vaststellen. Het onderzoek wordt echter aanzienlijk vergemakkelijkt door het feit dat in tegenstelling met de magnetische spinellen deze hexagonale verbindingen een sterke magnetische anisotropie vertonen. Door nu van dit verschijnsel gebruik te maken, konden de fijn gepoederde reactieprodukten gericht worden, en wel zodanig dat sommige van deze stoffen hun hexagonale as evenwijdig aan en weer andere deze as loodrecht op het magnetische veld instellen. Een röntgendiffractie-opname van een dergelijk gericht poeder ziet er betrekkelijk eenvoudig uit, en daardoor kon-

den de reactieprodukten als het ware „gemerkt” worden. Aldus te werk gaande, bleek het mogelijk te zijn de bereidingswijze te verbeteren zodat ten slotte monokristallen van de verschillende verbindingen verkregen konden worden. Het gelukte nu aan Braun^{30,31)} met behulp van röntgendiffractie de kristalstructuren van deze verbindingen aan de monokristallen te bepalen en hiervan uitgaande ook hun chemische samenstelling. De ingewikkelde chemische formules van deze stoffen zijn dus niet op de een of andere chemische wijze bepaald, maar door middel van röntgendiffractie. Dit is weer een voorbeeld van het feit hoe de scheikundige gebruik kan maken van fysische verschijnselen om niet alleen de juiste samenstelling maar zelfs het bestaan van ingewikkelde verbindingen vast te stellen.

Bij de bepaling van deze structuren is gebruik gemaakt van het feit dat er verband blijkt te bestaan tussen de kristalstructuur van deze verbindingen en die van de spinellen. Deze structuren kunnen op verschillende manieren beschreven worden³⁴⁾. In dit

artikel zal de notatie van Braun³¹⁾ gevolgd worden. In de kubisch-dichtste stapeling van de O^{2-} -ionen in spinellen hebben de trigonale O^{2-} -lagen loodrecht op de $\langle 111 \rangle$ -richtingen een onderlinge afstand van 2,33 Å. In de eenheidscel (32 O^{2-} -ionen) zijn er zes van deze lagen.

De kristalstructuren van **M**, **W** en **X** bevatten ook zulke dichtgestapelde zuurstoflagen. In sommige van deze lagen echter (de „Ba-lagen”) is een vierde deel van de O^{2-} -ionen op een geordende wijze vervangen door Ba^{2+} -ionen, die ongeveer even groot zijn. De nieuwe verbindingen kunnen nu in het algemeen beschreven worden door een afwisseling van blokken met een zuivere spinelstructuur die 4 of 6 zuurstoflagen omvatten, en blokken van 1 of 2 Ba-lagen. De Ba-lagen zijn met de spinelblokken op een „hexagonale” manier verbonden. In de verbinding **M** b.v. bevinden zich spinelblokken die 4 lagen dik zijn en waarin Fe^{3+} -ionen op een spinelachtige wijze over de tetraëdrische en octaëdrische plaatsen verdeeld zijn (S_4), afgewisseld door

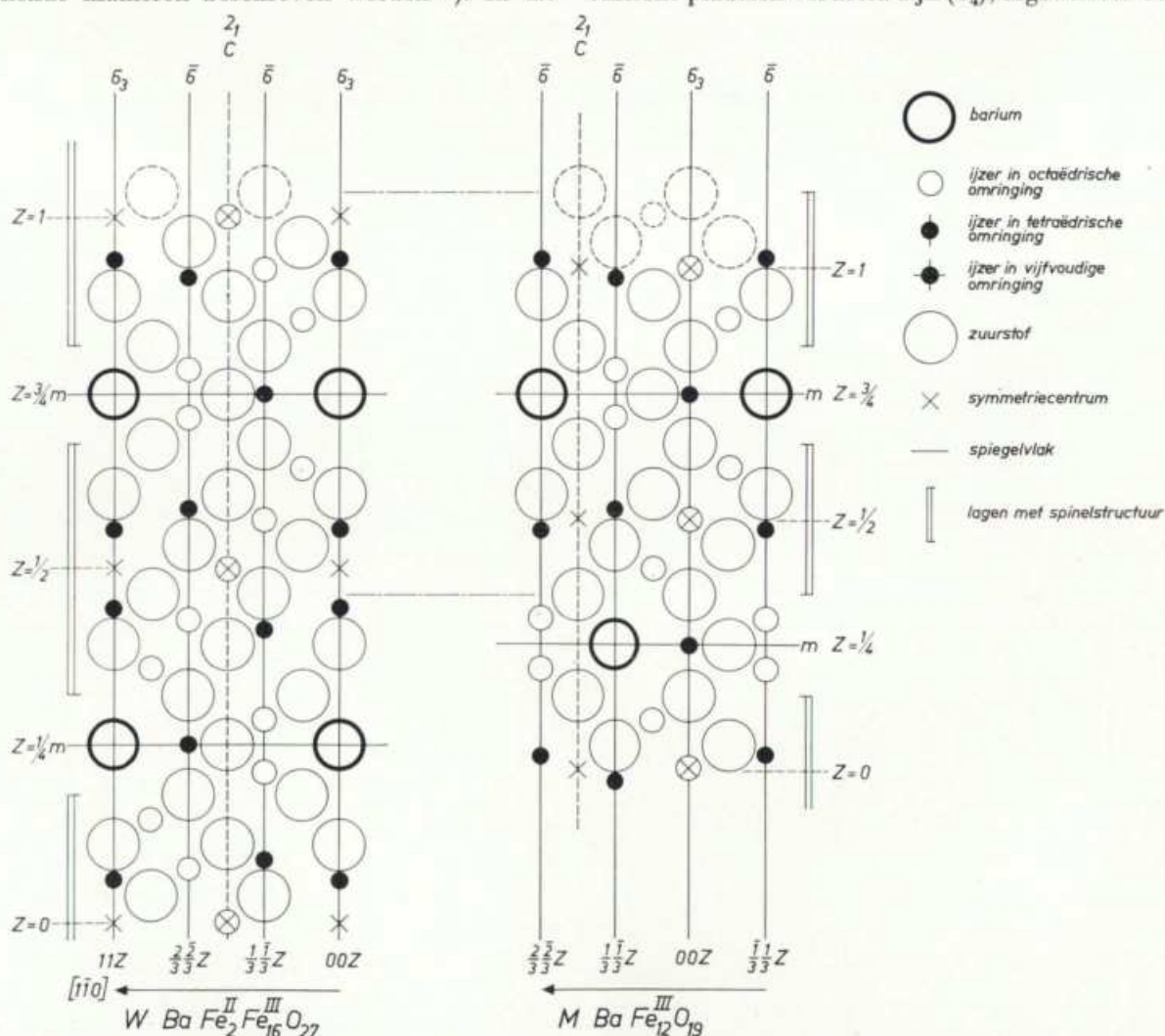


Fig. 4. Eenheidscel van **W** vergeleken met die van **M**. Alleen atomen en symmetrie-elementen in een spiegelvlak dat de c -as bevat zijn aangegeven. De relatieve plaatsen van alle atomen

in 9 lagen en die van de interstitiële atomen daartussen zijn identiek in de twee structuren. De spinelblokken in **M** bevatten 4 zuurstoflagen en die in **W** 6 zuurstoflagen.

een Ba-laag (B_1) die ook Fe-ionen bevat. De eenheidsceel bestaat uit twee gelijkwaardige stukken. Ieder van deze stukken bevat 5 lagen, heeft een dikte van $5 \times 2,33 = 11,6 \text{ \AA}$, en is opgebouwd uit 19 O^{2-} , 1 Ba^{2+} - en 12 kleine Fe^{3+} -ionen. Op overeenkomstige wijze bevat de verbinding W blokken van 6 spinellagen (S_6) afgewisseld met een Ba-laag (B_1). De spinellblokken bevatten hier niet slechts Fe^{3+} -ionen, maar per eenvoudigste blok ook nog 2 Me^{2+} -ionen (zie fig. 4). X bestaat uit een regelmatige afwisseling van lagen met M- en W-structuren. De lagenstructuur van de verbindingen M, W en X kan dus als volgt aangeduid worden:

$$M = M_5 = B_1S_4B_1S_4B_1 \dots \text{dikte } 11,6 = 5 \times 2,33 \text{ \AA}$$

$$W = W_7 = B_1S_6B_1S_6B_1 \dots \text{dikte } 16,4 = 7 \times 2,34 \text{ \AA}$$

$$X = X_{12} = B_1S_4B_1S_6B_1 \dots \text{dikte } 28,0 = 12 \times 2,33 \text{ \AA}$$

In de verbindingen Y, Z en U komt men de dubbele Ba-laag tegen (zie fig. 5):

$$Y = Y_6 = B_2S_4B_2 \dots \text{dikte } 14,7 = 6 \times 2,42 \text{ \AA}$$

$$Z = Z_{11} = B_2S_4B_1S_4B_2 \dots \text{dikte } 26,2 = 11 \times 2,38 \text{ \AA}$$

$$U = U_{16} = B_2S_4B_1S_4B_1S_4B_2 \text{ dikte } 37,8 = 16 \times 2,36 \text{ \AA}$$

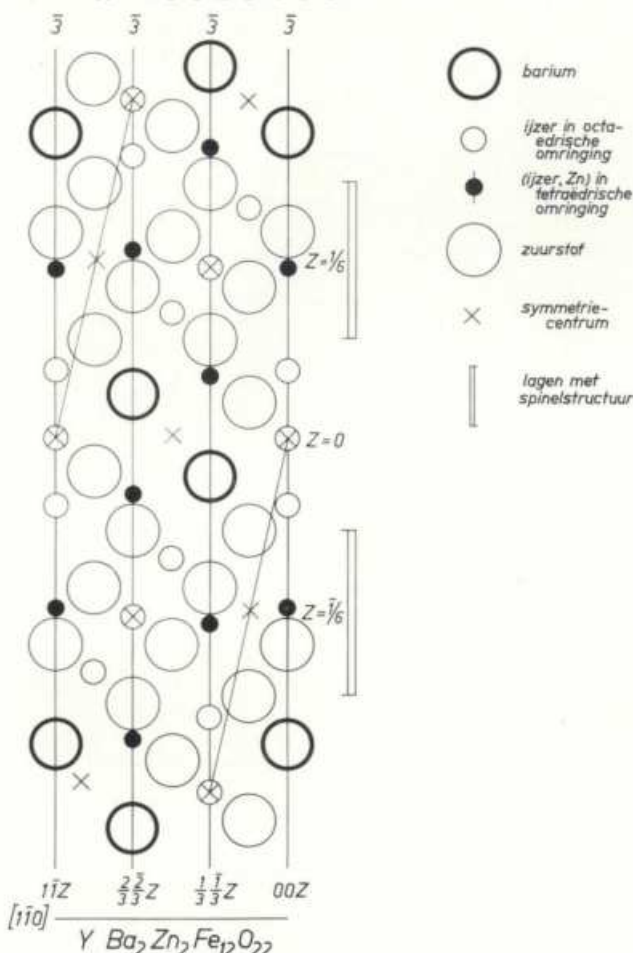


Fig. 5. Tweederde van de eenheidsceel van Y. Alleen de atomen en symmetrie-elementen in een spiegelvlak dat de c-as bevat zijn aangegeven. De spinellblokken bevatten 4 zuurstofflagen. De romboëdrische herhalingsafstand is mede aangegeven.

Hexagonale en trigonale ferrieten; magnetische eigenschappen

Een elegante bevestiging van de structuur van de beschouwde verbindingen is het feit dat Gorter³⁵⁾ in staat was, uitgaande van deze structuren, het ferrimagnetisch karakter van de W-, Y- en Z-verbindingen af te leiden en de waarde van de verzadigingsmagnetisatie te berekenen.

Er is reeds opgemerkt dat de nieuwe magnetische verbindingen magnetische anisotropie vertonen. Er zijn twee uitersten van deze anisotropie. Bij sommige verbindingen zijn de ionenspinnen alle evenwijdig aan de c-as gericht, terwijl in andere de spins loodrecht op deze as staan. In het eerste geval zijn de stoffen magnetisch hard en vormen daardoor een waardevolle nieuwe klasse van materialen naast die van de magnetisch zachte spinellen. In het tweede geval, bij de verbindingen met een voorkeursvlak, kan de magnetisatie elke richting in dat vlak aannemen maar is er energie nodig om de magnetisatie uit het vlak te draaien. De gehele Y-groep vertoont een dergelijk voorkeursvlak, en de Z- en W-verbindingen hebben dit wanneer het aanwezige tweewaardige metaal geheel of gedeeltelijk uit kobalt bestaat. Een overzicht hiervan wordt in tabel I gegeven.

Tabel I. Verbindingen met een voorkeursrichting $\uparrow$ of een voorkeursvlak $\perp$.

Groep	Tweewaardige ionen (Me)					
	Mn	Fe	Co	Ni	Zn	Mg
W	$\uparrow$	$\uparrow$	$\perp$	$\uparrow$	$\uparrow$	$\uparrow$
Z	$\uparrow$	$\uparrow$	$\perp$	$\uparrow$	$\uparrow$	$\uparrow$
Y	$\perp$	$\perp$	$\perp$	$\perp$	$\perp$	$\perp$

Een belangrijke eigenschap van de verbindingen die een voorkeursvlak van de magnetisatie vertonen is, dat hier de reeds eerder genoemde betrekking van Snoek niet meer geldig is en dat daardoor deze verbindingen bij veel hogere frequenties gebruikt kunnen worden³⁴⁾.

Het is verwonderlijk hoe verbindingen met ingewikkelde structuren zoals de juist genoemde, uit de smelt of door middel van sinteren van de oxydes bereid kunnen worden en dat een veel onregelmatiger afwisseling van de verschillende, maar toch veel op elkaar gelijkende blokken nooit schijnt voor te komen. Nooit is een kristal met een gemiddelde „structuur” gevonden. Het schijnt dus dat fouten tijdens het groeiproces in veel mindere mate voorkomen dan men op grond van de nauwe verwantschap van de blokken zou verwachten.

Polytypen van SiC; groei en stabiliteit

Dit probleem om het „geheugen” van een groeiend kristal te verklaren, ontmoet men misschien in nog scherpere vorm bij de polytypen van SiC, hoewel in deze structuren dikwijls een geringe wanorde mede aangetroffen wordt. SiC is reeds een aantal jaren een voorwerp van onderzoek geweest in dit laboratorium. In de loop van deze onderzoeken heeft Lely³⁶⁾ een methode ontwikkeld om grote, zuivere SiC-kristallen te doen groeien op laboratoriumschaal, door polykristallijn materiaal te laten rekristalliseren onder de evenwichts-Si-druk. Knippenberg³⁷⁾ onderzocht in het bijzonder de groei van kristallen van polytypen van SiC. Hij maakte hierbij gebruik van een verbeterde vorm van de techniek van Lely en paste bovendien een reeks andere bereidingsmethodes toe. Een van zijn resultaten was, dat onafhankelijk van de wijze van bereiding er een bepaald statistisch verband schijnt te bestaan tussen de polytypen die gevormd worden en de bereidingstemperatuur. Kwalitatief is dit verband in fig. 6 weergegeven.

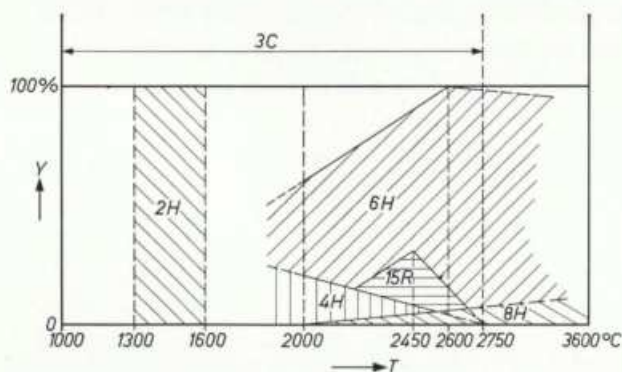


Fig. 6. Verband tussen de structuur van SiC en de bereidings-temperatuur. De relatieve hoeveelheden y van de verschillende niet-kubische polytypen (H en R), gevormd bij de bereidings-temperatuur T , zijn kwalitatief aangegeven. Kubisch (3C) SiC (instabiel) wordt bij alle temperaturen gevormd. De hoogste temperatuur van onderzoek bedroeg 2750 °C.

Zoals men daar kan zien, kan kubisch SiC bij alle temperaturen ontstaan; het is echter bij elke temperatuur instabiel. De kubische modificatie groeit slechts wanneer bepaalde voorwaarden van oververzadiging zijn vervuld, en dan nog slechts wanneer onder veelvuldige tweelingvorming gelijktijdig een „skelet” van anisotroop materiaal wordt gevormd.

Polytypen van SiC; verschillende bandafstand

Het is een merkwaardig feit dat voor deze structureel toch zeer veel op elkaar lijkende verbindingen de bandafstand sterk verschilt. Tabel II geeft een overzicht van de bandafstand voor de verschillende polytypen. De tweede kolom van deze tabel laat zien hoe in elk polytype de hexagonale (h) en de kubische (c) lagen op elkaar volgen in de richting van de c -as.

Tabel II. Verandering van de bandafstand in SiC met het polytype.

Polytype	Opeenvolging van de lagen	Bandafstand in eV	α
2H	hh	3	0
4H	hche	3,1	0,50
15R	hchee	2,9	0,60
6H	hchee	2,86	0,67
24R	hecheee	2,72	0,75
3C	ceee . . .	2,2	1

Men ziet dat de bandafstand op een regelmatige wijze schijnt te veranderen met het polytype. Dit wordt duidelijker wanneer de bandafstand uitgezet wordt als functie van het quotiënt α van het aantal kubische lagen gedeeld door het totaal aantal lagen per eenheidsceel (fig. 7).

Het is bekend dat er in vergelijkbare structuren een betrekking bestaat tussen de bandafstand, de roosterenergie en de energie van een enkele binding. Hierbij neemt de bandafstand toe met toenemende roosterenergie of toenemende energie van een enkele binding. Als we dit ook op de reeks polytypen van SiC toepassen, kunnen we een toenemen van de roosterenergie verwachten voor de verschillende polytypen gaande van onder naar boven in tabel II. Het feit dat kubisch SiC instabiel is, lijkt met deze correlatie niet in strijd te zijn.

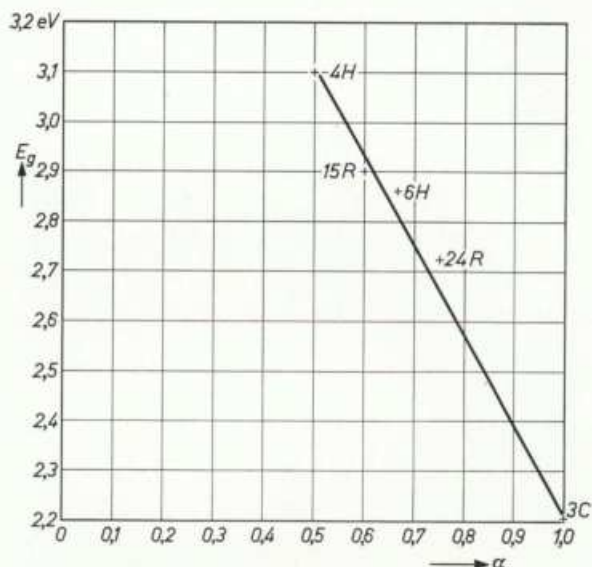
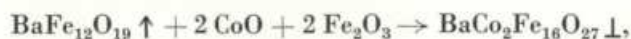


Fig. 7. Grafische voorstelling van de bandafstand E_g van de verschillende polytypen van SiC als functie van de verhouding α tussen het aantal „kubische” lagen en het totale aantal lagen per eenheidsceel.

Topotactische reacties

We keren terug naar het systeem BaO-MeO-Fe₂O₃ (met Me = Zn, Co, enz.). Onder geschikte voorwaarden kunnen deze verbindingen uit elkaar bereid worden door reacties tussen vaste stoffen. Indien b.v. een pilletje bestaande uit 1 equivalent BaFe₁₂O₁₉, 2 equivalenten CoO en 2 equivalenten Fe₂O₃ ge-

durende enige uren op 1250 °C verhit wordt, vindt de volgende vastestofreactie plaats:



waarbij de tekens $\uparrow$ en $\perp$ respectievelijk een voorkeursrichting en een voorkeursvlak van de magnetisatie aanduiden. Op de beschreven wijze wordt een gesinterde massa van hexagonale kristalletjes verkregen. Een merkwaardige vondst van Lotgering³⁸⁾ is nu het feit dat wanneer de korrels van het $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (M) in het oorspronkelijke pilletje van te voren door middel van een statisch magneetveld gericht waren, de *c*-as van de kristallen van de nieuwe verbinding (W) dezelfde richting heeft als de *c*-as van de oorspronkelijke M-kristallen, die evenwel gedurende de reactie verdwenen zijn. In het oorspronkelijke mengsel zijn alleen de M-kristallen gericht. Het is dus duidelijk dat de voorkeursrichting van de W-kristallen wordt veroorzaakt door chemische reacties die plaatsvinden op het oppervlak van de M-kristallen. Zulke reacties worden topotactische reacties genoemd. Een dergelijke reactie begint als een epitactisch proces, maar is er toch wezenlijk verschillend van. Bij het eindproduct van een epitactische reactie is de nieuwe fase op de uitgangsfase, het substraat, gegroeid. Bij een topotactische reactie echter verdwijnt het substraat volledig gedurende de reactie. In het zojuist gegeven voorbeeld neemt de hoeveelheid gericht materiaal aanzienlijk toe tijdens de reactie. Bij verder onderzoek werd gevonden dat niet alle reacties van deze aard tot goed gerichte eindprodukten leiden; de diffusie van de reagerende verbindingen en tussenverbindingen is hierbij van groot belang. Alle topotactische reacties verlopen bij temperaturen (1000-1300 °C) die ver boven de Curie-temperaturen (300-500 °C) liggen. Tijdens de reacties zijn dus de oorspronkelijke magnetische velden van de ferri-magnetische korrels geheel verdwenen, en kunnen niet van invloed zijn op het richten van de te vormen verbindingen.

Inwendige ladingscompensatie

Geleide valentie

Verwey en De Boer⁷⁾, uitgaande van de opvatting van Wagner aangaande het optreden van verschillend geladen ionen in niet-stoechiometrische verbindingen dat aanleiding geeft tot een elektronisch geleidingsvermogen en van hun eigen verklaring van het geleidingsvermogen van Fe_3O_4 , veralgemeenden deze opvatting. Zij stelden dat een elektronisch geleidingsvermogen aangetroffen zou worden bij elke verbinding waarin equivalenten

kristallografische plaatsen bezet zouden zijn door ionen van hetzelfde element, die echter in twee ladingstoestanden, niet meer dan één elektron-eenheid verschillend, zouden voorkomen. Hieruit ontwikkelden Verwey, Haaijman, Romeijn en Van Oosterhout^{39,40)} het principe van de geleide valentie. Wanneer b.v. in NiO, dat Ni^{2+} -ionen bevat, sommige van deze ionen vervangen zouden worden door Li^+ -ionen, dan zou een even grote hoeveelheid Ni^{2+} -ionen over moeten gaan in Ni^{3+} -ionen om de elektroneutraliteit te handhaven. Volgens de bovengenoemde opvattingen zou dan dit Li-bevatend NiO in tegenstelling met zuiver NiO een elektronisch geleidingsvermogen moeten vertonen. Dit blijkt ook inderdaad het geval te zijn. Het geleidingsvermogen van NiO stijgt van $10^{-14} \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ voor zuiver NiO tot $10^2 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ door inbouw van 10% Li.

Hiervoor moet aan één voorwaarde voldaan zijn: het vreemde ion (hier Li^+) moet een geringere neiging vertonen om van lading te veranderen dan de ionen van het moederkristal. Verder mag, om merkbare effecten te verkrijgen, de ionenstraal van het vreemde ion niet te veel van die van het te vervangen ion verschillen, omdat anders slechts zeer kleine concentraties van de vreemde ionen opgenomen kunnen worden.

Het zal duidelijk zijn dat op deze wijze halfgeleidende verbindingen van het N-type zowel als van het P-type kunnen worden verkregen. De inbouw van Li^+ in NiO, aanleiding gevend tot de vorming van Ni^{3+} -ionen tussen de Ni^{2+} -ionen, veroorzaakt geleiding van het P-type, terwijl de inbouw van Ti^{4+} -ionen in Fe_2O_3 onder gelijktijdige vorming van Fe^{2+} -ionen tussen de normale Fe^{3+} -ionen aanleiding geeft tot geleiding van het N-type.

In tabel III zijn een aantal, hoofdzakelijk oxydische, systemen verenigd waarop men dit principe heeft toegepast. De eerste kolom bevat de formules van het slecht geleidende moederkristal, terwijl de tweede kolom de formules geeft van de verbinding die het vreemde ion bevat dat het vetgedrukte ion in de eerste kolom voor een gering deel gaat vervangen. De kolommen III en IV duiden respectievelijk de normale ionen en de ionen met afwijkende waardigheid aan die zeer waarschijnlijk in het eindproduct aanwezig zijn.

De systemen die in tabel III verenigd zijn, zijn echter geenszins de enige waarvoor dit principe van geleide valentie van toepassing is gebleken. Verder onderzoek maakte het duidelijk dat dit principe zeer algemeen is en ook geldig is voor b.v. verbindingen zoals CdS ⁴¹⁾, PbS ⁴²⁾ en CdTe ^{43,44)}. Deze verbindingen kunnen halfgeleiding van het P-type vertonen als ionen zoals Ag^+ op kationplaatsen worden

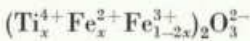
Tabel III. Systemen waarin het principe van geleide valentie is toegepast.

I	II	III	IV	Kristalstructuur
NiO	Li ₂ O	Ni ^{II}	Ni ^{III}	keukenzout
CoO	Li ₂ O	Co ^{II}	Co ^{III}	
MnS	Li ₂ S	Mn ^{II}	Mn ^{III}	
CaTiO ₃	La ₂ O ₃	Ti ^{IV}	Ti ^{III}	perofskiet
SrTiO ₃	La ₂ O ₃	Ti ^{IV}	Ti ^{III}	
BaTiO ₃	La ₂ O ₃	Ti ^{IV}	Ti ^{III}	
CaMn ^{IV} O ₃	La ₂ O ₃	Mn ^{IV}	Mn ^{IV}	
LaMn ^{III} O ₃	CaO	Mn ^{III}	Mn ^{IV}	
LaMn ^{III} O ₃	SiO	Mn ^{III}	Mn ^{IV}	
LaFe ^{III} O ₃	SiO	Fe ^{III}	Fe ^{IV}	spinel
ZnFe ₂ O ₄	TiO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
MgFe ₂ O ₄	TiO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
NiFe ₂ O ₄	TiO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
CoFe ₂ O ₄	TiO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
Fe ₂ O ₃	TiO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	hematiet
Fe ₂ O ₃	SnO ₂	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
Fe ₂ O ₃	WO ₃	Fe ^{III}	Fe ^{II}	
SnO ₂	Sb ₂ O ₅	Sn ^{IV}	Sn ^{II}	rutiel
TiO ₂	Ta ₂ O ₅	Ti ^{IV}	Ti ^{III}	
MgWO ₄	Cr ₂ O ₃	W ^{VI}	W ^V	wolframiet

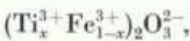
ingebouwd, en halfgeleiding van het *N*-type als ionen zoals Ga³⁺, In³⁺, Sb³⁺ op deze plaatsen worden gebracht. In de gegeven voorbeelden zijn de vreemde ionen tot nu toe kationen geweest. Echter ook vreemde anionen kunnen dezelfde verschijnselen veroorzaken. De inbouw van b.v. Cl⁻-ionen op S²⁻-plaatsen in CdS kan leiden tot de vorming van een gelijke hoeveelheid Cd⁺-ionen tussen de normale Cd²⁺-ionen en daardoor tot een geleiding van het *N*-type.

Experimentele bepaling van de energieniveaus van de elektronen van verontreinigingen in Fe₂O₃

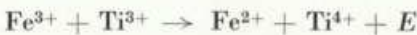
Zoals reeds is opgemerkt, moet het vreemde ion een geringere neiging vertonen zijn waardigheid te veranderen dan de ionen van het moederkristal, om bij inbouw aanleiding te geven tot geleide valentie. Jonker⁴⁵⁾ heeft deze voorwaarde kwantitatief onderzocht voor Fe₂O₃. Inbouw van Ti leidt tot de vorming van



en geleiding van het *N*-type. Echter, een tweede formule



die geen ladingsverandering van de Fe-ionen met zich meebrengt, is op het eerste gezicht niet uitgesloten. Om de twee mogelijkheden met elkaar te vergelijken, moeten we de energiebalans van de reactie



opstellen. De betrokken energieën zijn:

- 1) Het verschil van de beide ionisatie-energieën: $I_3(Fe) - I_4(Ti)$.
- 2) De polarisatie-energieën ΣE_p , veroorzaakt door het elektrische veld rondom de Fe²⁺- en Ti⁴⁺-ionen die een lading hebben die afwijkt van die van de normale Fe³⁺-ionen in Fe₂O₃. Grote berekeningen laten zien dat deze polarisatie-energie per paar Fe²⁺- en Ti⁴⁺-ionen ongeveer 16 eV bedraagt.
- 3) De energieën ten gevolge van kristalveldstabilisatie, $\Sigma E_{k.v.}$, die van de orde van 1 eV zijn.

Voor *E* kan daarmee de volgende uitdrukking opgesteld worden:

$$E = I_3(Fe) - I_4(Ti) + \Sigma E_p + \Sigma E_{k.v.}$$

Proefstukjes van Fe₂O₃ waaraan verschillende vreemde ionen waren toegevoegd in een concentratie van 2 at.%, werden alle in lucht op 1300 °C gestookt. Daarna werd van deze stukjes de elektrische weerstand bij kamertemperatuur gemeten. Het resultaat is in tabel IV weergegeven. In deze tabel kan men twee groepen van elementen onderscheiden: één groep die bij inbouw in het Fe₂O₃ tot lage waarden van ρ leidt, en een andere die geen invloed heeft op de weerstand. Het is duidelijk dat voor de elementen van de tweede groep de waarde van *E* van bovenstaande reactie negatief is.

Indien men de relatief lage waarden van $\Sigma E_{k.v.}$ verwaarloost, moet voor het optreden van geleide valentie de waarde $I_3(Fe) - I_4(v.a.)$ gecompenseerd worden door ΣE_p . Uit tabel IV volgt dat, voor het geval van Fe₂O₃, ΣE_p de waarde moet hebben van ongeveer 17 eV, in goede overeenstemming met de ruwe berekeningen. Het is merkwaardig hierbij op te merken dat op deze wijze de moeilijk berekenbare polarisatie-energieën door het meten van weerstanden experimenteel bepaald, als het ware „getitreerd”, konden worden.

Tabel IV. Invloed van 2 at.% substitutionele vreemde ionen op de elektrische weerstand van Fe₂O₃. Voor iedere ionsoort is de vierde ionisatie-energie *I*₄ aangegeven, alsmede het verschil tussen deze en de derde ionisatie-energie van ijzer *I*₃(Fe).

Vreemd atoom (v.a.)	ρ Ω cm	<i>I</i> ₄ (v.a.) eV	<i>I</i> ₃ (Fe) - <i>I</i> ₄ (v.a.) eV
Ta	1,3	33,3	- 2,7
Zr	0,7	34,0	- 3,4
Nb	7,9	38,3	- 7,7
Ti	0,6	43,2	-12,6
Sn	0,4	46,4	-15,8
V	1,5 × 10 ⁶	48,0	-17,4
Cr	1,0 × 10 ⁸	50,6	-20,0
Mn	7,0 × 10 ⁷	53,7	-23,1
Fe	1,7 × 10 ⁴	56,2	-25,6

De resultaten van dit onderzoek kunnen verder gebruikt worden om een schema voor de energieën van de elektronen op te stellen voor Fe_2O_3 met verschillende verontreinigingen. Zoals verderop in het artikel nog wat uitvoeriger besproken zal worden, neemt men algemeen aan dat voor de oxydes van de overgangsmetalen dit schema niet uit banden bestaat maar uit gelokaliseerde niveaus. De afstand E_g tussen de bezette Fe^{3+} -niveaus en de lege Fe^{2+} -niveaus wordt gegeven door

$$-E_g = I_3(\text{Fe}) - I_4(\text{Fe}) + \Sigma E_p + \Sigma E_{k.v.}$$

$\Sigma E_{k.v.}$ kan nu niet meer verwaarloosd worden en is ongeveer gelijk aan 2 eV. Als nu nog voor ΣE_p de waarde van 17 eV wordt genomen, dan krijgt men, met $I_3 - I_4 = -25,6$ eV, voor E_g de waarde $E_g \approx 6,5$ eV. Fig. 8 laat het elektronenenergieschema van Fe_2O_3 zien.

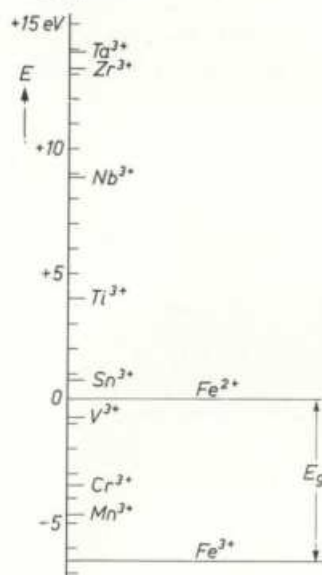


Fig. 8. Elektronenenergieschema van Fe_2O_3 met de niveaus van de verschillende gesubstitueerde vreemde ionen.

Men kan opmerken dat de in dit experiment verkregen resultaten en ook die van een groot aantal andere experimenten in de chemie van de vaste stof, de oxydes betreffende, kwalitatief voorspeld kunnen worden met behulp van een „chemisch gevoel”. Dit chemische gevoel is echter niets anders dan een bijna onbewust aanwezige kennis omtrent de reacties tussen ionen opgelost in water. Deze wat wonderlijke samenhang kan begrepen worden als men in acht neemt dat de hydratatie-energieën van ionen (6-11 eV) ongeveer gelijk zijn aan de polarisatie-energieën (6-9 eV) in deze oxydische (en andere) ionogene verbindingen.

Berekening van de energieniveaus van de elektronen in NiO

Van Houten ⁴⁶⁾ was in staat het schema van de

energieniveaus van de elektronen te berekenen, en wel voor NiO. Hij nam hierbij aan 1) dat de verbinding is opgebouwd uit Ni^{2+} - en O^{2-} -ionen en 2) dat de elektronen sterk gelokaliseerd zijn. Bij de berekening werden de volgende energieën in beschouwing genomen: a) de ionisatie-energieën of de elektronenaffiniteiten van de betrokken ionen, b) de Madelung-energieën, c) de polarisatie-energieën en d) de energieën ten gevolge van de stabilisatie van de ionen der overgangsmetalen door het kristalveld. Hij berekende op deze wijze een energieverval van 5,4 eV tussen het hoogste gevulde niveau (dat van de Ni^{2+} -ionen) en het laagste lege niveau (dat van de Ni^{3+} -ionen). Dit grote energieverval, evenals dat van 6,5 eV voor Fe_2O_3 , geeft een kwantitatieve verklaring van het feit dat zuivere oxydes van dit type een zeer hoge specifieke weerstand vertonen.

Beweeglijkheid van elektrische ladingdragers in oxydes van overgangsmetalen

De Boer en Verwey ⁸⁾ vestigden de aandacht op het feit dat de zuivere stoechiometrische oxydes van de overgangsmetalen bijna alle isolatoren zijn. De metaalionen die in deze oxydes voorkomen, hebben echter meestal niet volledig gevulde 3d- of 4f-schillen. Voor verbindingen van ionen met onvolledige 3d-schillen moet men op grond van de theorie van Bloch en Wilson metallische geleiding verwachten. Het werd duidelijk dat in plaats van het gebruikelijke bandenschema voor de elektronen-energieën, deze oxydes scherpe energieniveaus moesten vertonen.

Zoals reeds is opgemerkt, kan het geleidingsvermogen van deze oxydes aanmerkelijk vergroot worden door de inbouw van een overmaat van een van hun componenten of door inbouw van ionen met een afwijkende waardigheid. De op deze manier verkregen halfgeleiders vertonen meestal een sterke toeneming van het geleidingsvermogen met de temperatuur:

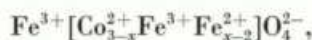
$$\sigma = \sigma_0 e^{-Q/kT}.$$

De activeringsenergieën Q kunnen waarden hebben die liggen tussen 0,1 en 0,5 eV, en nemen af met toenemende afwijking van de stoechiometrie of concentratie van vreemde ionen ⁴⁶⁾.

Het is lange tijd onduidelijk gebleven of deze activeringsenergie wordt veroorzaakt door de energie nodig om de ladingdragers van hun centra te dissociëren of door het feit dat, in tegenstelling met bandhalfgeleiders zoals Ge, in deze materialen met de beweging van ladingdragers een activerings-energie gemoeid zou zijn.

Om dit vraagstuk te onderzoeken, mat Jonker ⁴⁷⁾

het geleidingsvermogen van mengkristallen van de spinellen CoFe_2O_4 en Fe_3O_4 of Co_3O_4 als functie van de temperatuur en de concentratie. In de mengkristallen $\text{Co}_{3-x}\text{Fe}_x\text{O}_4$ in de buurt van $x = 2$ heeft men voor $x > 2$ een Fe^{2+} -concentratie van $x - 2$ en voor $x < 2$ een Co^{3+} -concentratie van $2 - x$. Met toepassing van de regels omtrent de kationenverdeling in spinellen kan men besluiten dat voor $x > 2$,



men te maken heeft met elektronengeleiding via de Fe-ionen, en dat voor $x < 2$,



gatengeleiding optreedt via de Co-ionen.

Met deze reeks van mengkristallen is het derhalve mogelijk het geleidingsvermogen en het karakter daarvan te variëren zonder centra te introduceren. De concentratie en de soort van ladingdragers wordt nl. direct bepaald door de verhouding van Co- en Fe-concentraties (fig. 9). Door nu het geleidings-

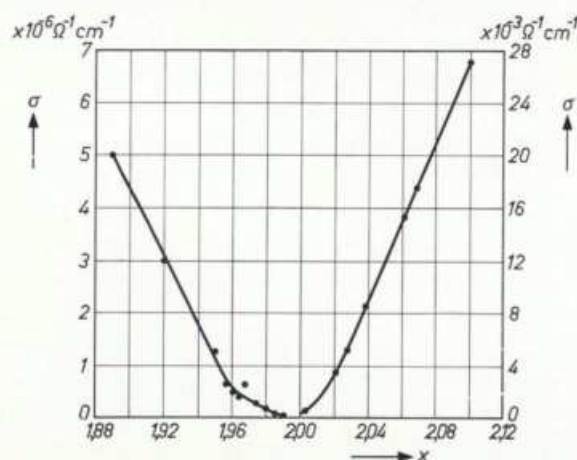


Fig. 9. Het geleidingsvermogen σ bij kamertemperatuur van een reeks mengkristallen tussen Co_3O_4 en Fe_3O_4 ($\text{Co}_{3-x}\text{Fe}_x\text{O}_4$) in de buurt van de samenstelling CoFe_2O_4 ($x = 2$). Voor het gatengeleidingsvermogen (overmaat aan kobalt: $x < 2$) moet de linker ordinaat worden gebruikt; voor het elektronengeleidingsvermogen (overmaat aan ijzer: $x > 2$) de rechter ordinaat.

vermogen als functie van de temperatuur te meten, kon vastgesteld worden dat het de beweeglijkheid der ladingdragers is die zo sterk van de temperatuur afhangt. Bovendien bleken deze beweeglijkheden (bij kamertemperatuur) zeer klein te zijn, nl. $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ voor elektronen en ongeveer $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ voor gaten. De respectieve activeringsenergieën bedragen ongeveer 0,2 en 0,5 eV. De Seebeck-coëfficiënt bij kamertemperatuur werd eveneens gemeten en wel als functie van de concentratie van de ladingdragers (fig. 10). Met behulp hiervan werd de concentratie van beschikbare plaatsen bepaald: er werd een waarde van ongeveer 10^{22} per cm^3 gevonden. Dit is

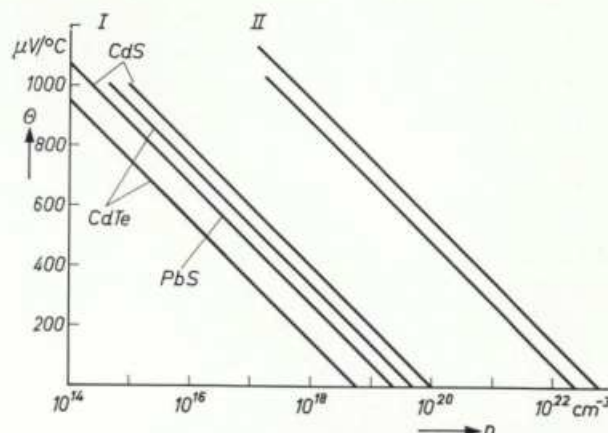


Fig. 10. Schematisch overzicht van het Seebeck-effect θ van een aantal verbindingen als functie van de concentratie (n) van elektronen of gaten, geëxtrapoleerd tot het snijpunt met de abscis. Groep I wordt gevormd door halfgeleiders van het Ge-type, zoals CdS^{41} , PbS^{42} en CdTe^{43} . De twee lijnen van groep II omvatten de metingen aan NiO en $\text{CoFe}_2\text{O}_4^{46)47}$.

ongeveer gelijk aan het aantal metaalatomen per cm^3 . De gevonden concentratie ($10^{22}/\text{cm}^3$) is geheel verschillend van wat men voor bandhalfgeleiders kan verwachten (ongeveer $10^{19}/\text{cm}^3$) en in goede overeenstemming met de veronderstelling dat de ladingdragers in deze oxydes van het ene metaalion naar het andere springen, zoals men verwachten moet voor scherp gelokaliseerde elektronen. In dit geval moet men daarom de activeringsenergieën Q beschouwen als energie nodig om de „Landau trapping” van het elektron te overwinnen, d.w.z. de polarisatie van het kristal rondom de zich langzaam bewegende ladingdragers (zie fig. 11).

Oxydes die geleidend gemaakt zijn door middel van een geringe afwijking van de stoechiometrie of

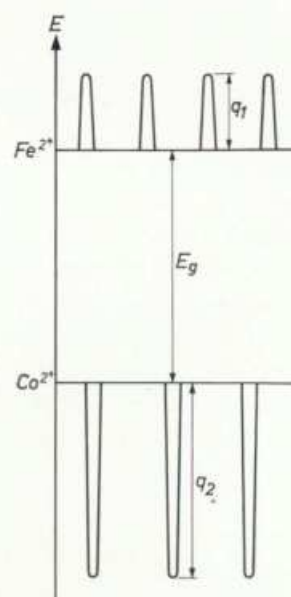


Fig. 11. Elektronenenergieschema voor $\text{Co}_{3-x}\text{Fe}_x\text{O}_4$ ($x = 2$). Voor zuiver CoFe_2O_4 , bij lage temperatuur, is het Fe^{2+} -niveau leeg en zijn alleen Fe^{3+} -ionen aanwezig, en is het Co^{2+} -niveau vol en zijn slechts Co^{3+} -ionen aanwezig. q_1 en q_2 zijn de activeringsenergieën voor het springen van de elektronen of de gaten.

door inbouw van vreemde atomen, bevatten centra. Bij deze oxydes zullen bij lage temperatuur de ladingdragers aan de centra gebonden worden, en daarmee zal het geleidingsvermogen verdwijnen. In tegenstelling met de halfgeleiders, zoals Ge, met energiebanden en niet-gelokaliseerde elektronen, zal hier de gevangen ladingdrager, ten gevolge van zijn lokalisering, te zamen met de afwijkende lading van het centrum een permanente dipool vormen. Deze dipool zal zich in een aangelegd veld kunnen richten door middel van plaatselijke sprongen van de gevangen ladingdrager, over equivalente plaatsen rondom het centrum. Door meting van de diëlektrische verliezen (Volger⁴⁸) kan men de relaxatiesnelheid ($1/\tau$) bepalen, die wordt gegeven door:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} e^{-u/kT}.$$

De waarde van de activeringsenergie u kan gevonden worden door deze metingen als functie van de temperatuur uit te voeren. Deze activeringsenergie behoeft niet gelijk te zijn aan de activeringsenergie q die een rol speelt bij de beweging van de van het centrum afgedissocieerde ladingdrager. Dergelijke metingen, bij lage temperatuur uitgevoerd aan $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ dat een kleine overmaat Fe bevatte, gaven voor u een waarde van 0,005 eV⁴⁸).

Van Houten⁴⁶) mat de Seebeck-coëfficiënt in NiO met ongeveer 20% Li als functie van de temperatuur, en hij was in staat daaruit de dissociatie-energie te berekenen die nodig is om de gaten uit hun centra ($\text{Li}^+\text{Ni}^{2+}$) vrij te maken. Deze dissociatie-energie bleek klein te zijn: $E_a \approx 0,035$ eV, zoals zeer dikwijls het geval is in deze systemen bij hoge concentraties van de centra.

Activatoren en coactivatoren in fosforen

Zoals we gezien hebben, speelt ladingcompensatie een belangrijke rol bij het principe der geleide valentie. Ditzelfde idee van ladingcompensatie werd door Kröger^{49,50,51,52}) toegepast bij de ontwarring van de ingewikkelde verschijnselen bij fosforen van het ZnS-type. Hij kon aantonen dat de zg. activatoratomen Ag, Au en Cu in werkelijkheid effectief negatief geladen eenwaardige kationen (Ag^+) zijn, die de tweewaardige Zn^{2+} -ionen vervangen. Hun effectieve negatieve lading wordt nu gecompenseerd door effectief positief geladen eenwaardige anionen (coactivatoren), zoals chloor (Cl^-), op S^{2-} -plaatsen in het kristal gebracht vanuit de NaCl-flux die als mineralisator gebruikt wordt. Als de activatoratomen Ag^+ en Cu^+ werkelijk Zn^{2+} -plaatsen bezetten en niet b.v. interstitiële plaatsen, dan moet hun

effectieve negatieve lading ook gecompenseerd kunnen worden door driewaardige kationen, zoals Al^{3+} , Ga^{3+} , In^{3+} en Sc^{3+} , die Zn^{2+} -plaatsen bezetten. Dit bleek inderdaad het geval te zijn. Kröger, Hoogenstraaten⁵³), Klasens⁵⁴) en later Van Gool⁵⁵) waren met behulp van deze opvattingen in staat voor dit type fosforen een verrassend groot aantal fysische verschijnselen, verbonden met luminescentie, te verklaren.

Algemene defectchemie

Tot nu toe hebben wij twee manieren ontmoet waarop de afwijkende lading van een vreemd ion dat in het kristal is ingebouwd, kan worden gecompenseerd. De eerste (geleide valentie) bestaat in een overeenkomstige verandering in de lading van één van de ionen in het moederkristal. De tweede bestaat in het gelijktijdig inbouwen van andersoortige vreemde ionen met zodanige lading dat de afwijkende ladingen van deze twee soorten vreemde ionen elkaar opheffen. Er is nog een derde mogelijkheid. Een bekend voorbeeld is dat van de inbouw van tweewaardige Ca^{2+} -ionen in vast NaCl (zie b.v. Haven⁵⁶)). Hier wordt de effectieve eenwaardige positieve lading van het Ca^{2+} -ion dat een Na^+ -ion vervangt, gecompenseerd door de effectieve negatieve lading van een ontbrekend Na^+ -ion, d.w.z. door een effectief negatief geladen Na^+ -ionvacature. Kröger en Vink^{41,57,58,59,60}) vroegen zich nu af waarom soms de afwijkende lading van een vreemd ion gecompenseerd wordt door een overeenkomstige verandering in de waardigheid van de ionen van het moederkristal, terwijl in andere gevallen in het moederkristal effectief geladen atomaire roosterfouten (zoals vacatures of interstitiële atomen) gevormd worden, om hetzelfde doel, elektroneutraliteit, te bereiken.

De thermodynamica nu eist dat ook in een zuivere verbinding voor elke temperatuur hoger dan 0 °K allerlei soorten roosterfouten aanwezig zijn, zoals vrije elektronen, gaten en effectief geladen en ongeladen atomaire „imperfecties”. Uitgaande van opvattingen ontwikkeld door Schottky en Wagner, waren Kröger en Vink in staat een algemene theorie uit te werken. Met behulp hiervan kon afgeleid worden hoe de concentraties van de verschillende elektronische en atomaire imperfecties afhangen van de concentraties van vreemde ionen in het kristal en van de samenstelling van de gasfase die in evenwicht is met de kristallen bij de bereidingstemperatuur. In deze theorie zijn de effectief geladen roosterfouten van groot belang. In een eenvoudig geval, b.v. dat van zuiver PbS, heeft men vier van deze geladen roosterfouten: vrije

elektronen, gaten, effectief negatief geladen loodvacatures V'_{pb} en effectief positief geladen zwavelvacatures V'_s . In deze notaties stelt V weer een vacature voor en betekent een punt een effectief positieve lading en een accent een effectief negatieve lading. De concentraties van deze roosterfouten hangen met elkaar samen door betrekkingen van de vorm van de massawerkingwet. Zo bestaat tussen de concentratie (n) van de vrije elektronen en die (p) van de gaten de volgende betrekking:

$$np = K_i.$$

Een dergelijke betrekking bestaat tussen de concentraties $[V'_{pb}]$ en $[V'_s]$ van de atomaire imperfecties in PbS:

$$[V'_{pb}] [V'_s] = K'_s.$$

De invloed van de samenstelling van de gasfaze wordt tot uitdrukking gebracht door de betrekking:

$$P_{pb} = K'_r [V'_s] n \quad (\text{of } P_{S_2}^{1/2} = K_{ox} [V'_{pb}] p),$$

waarin P_{pb} de partiële druk voorstelt van de loodatomen in de gasfaze in evenwicht met het PbS, en P_{S_2} die van de zwavelmoleculen.

Elektroneutraliteit moet altijd gehandhaafd blijven, dus:

$$n + [V'_{pb}] = p + [V'_s].$$

De hierbij gebruikte nomenclatuur en ook een nader onderzoek van dieper liggende facetten van deze theorie zijn behandeld in een artikel van Kröger, Stieltjes en Vink⁶¹).

Bij de werkelijke berekening van evenwichten stuit men dikwijls op elementaire maar langademige en gecompliceerde wiskunde. Brouwer⁶²) publiceerde een methode met behulp waarvan de berekeningen aanzienlijk vereenvoudigd kunnen worden. Het blijkt nl. dat dikwijls voor uitgebreide gebieden van de partiële drukken van de componenten slechts twee roosterfouten in de bovenstaande vergelijking voor elektroneutraliteit concentraties hebben die niet verwaarloosd mogen worden. In ons geval van PbS kan men b.v. voor hoge partiële looddrukken in de gasfaze de uitdrukking voor de elektroneutraliteit vereenvoudigen tot:

$$n = [V'_s],$$

d.w.z. Pb-overmaat in het vaste PbS en geleidingsvermogen van het N-type. Voor hoge partiële S_2 -drukken (d.w.z. lage Pb-drukken) heeft men evenwel als vereenvoudiging:

$$p = [V'_{pb}],$$

wat neerkomt op S-overmaat in het vaste PbS en

geleiding van het P-type. Daartussenin is er een gebied waar de uitdrukking voor de elektroneutraliteit vereenvoudigd kan worden tot:

$$n = p.$$

Als we nu het geval van Bi-houdend PbS beschouwen, dan hebben wij voor de voorwaarde van elektroneutraliteit de uitdrukking:

$$n + [V'_{pb}] = p + [V'_s] + [Bi'_{pb}],$$

immers, driewaardige Bi^{3+} -ionen op Pb^{2+} -plaatsen vormen een effectief positief geladen Bi'_{pb} -centrum.

Het kan nu gemakkelijk worden aangetoond dat voor voldoende hoge concentraties van Bi twee nieuwe vereenvoudigde vormen van de voorwaarde van elektroneutraliteit naar voren komen, te zamen met de overeenkomstige gebieden van partiële Pb-drukken. Voor hoge Pb-drukken heeft men:

$$n = [Bi'_{pb}],$$

d.w.z. de effectieve lading van het vreemde ion wordt gecompenseerd door een elektronische imperfectie (verandering in waardigheid van één van de atomen van het moederkristal). Met andere woorden, voor hoge Pb-drukken wordt Bi ingebouwd volgens het principe van de geleide valentie, met vermindering van de vorming van effectief geladen Pb-vacatures. Voor lage Pb-drukken echter wordt de voorwaarde voor de elektroneutraliteit:

$$[V'_{pb}] = [Bi'_{pb}].$$

Met andere woorden, de effectieve lading van het Bi-ion wordt nu gecompenseerd door een effectief tegengesteld geladen atomaire imperfectie.

Toepassing van de defectchemie in CdS, PbS en SnS

Met behulp van deze beschouwingen was het mogelijk te verklaren, kwalitatief en kwantitatief, hoe voor CdS, ZnS, PbS, CdTe en SnS de eigenschappen van de verbindingen afhangen van de soort en de concentratie van de ingebouwde verontreinigingen en van de partiële drukken van de componenten van het moederkristal tijdens de bereiding. Zo was het mogelijk te verklaren waarom CdS dat Ga op Cd-plaatsen bevat, als het bereid wordt onder hoge S_2 -drukken een heldere rode kleur krijgt en een isolator is, terwijl als het bereid wordt onder relatief hoge Cd-drukken, het de gele kleur van zuiver CdS behoudt maar een groot geleidingsvermogen van het N-type verkrijgt, waarbij de concentratie van de ladingdragers gelijk is aan die van de Ga-atomen.

De verklaring komt erop neer dat bij bereiding onder hoge S_2 -drukken de Ga^{3+} -ionen worden gecompenseerd door de vorming van effectief negatief

geladen Cd-vacatures, welke op een hier niet nader aan te duiden wijze verantwoordelijk zijn voor de rode kleur. Bij hoge Cd-drukken echter worden de Ga^{3+} -ionen volgens het principe van de geleide valentie ingebouwd, onder vorming van een gelijke hoeveelheid Cd^{2+} -ionen tussen de normaal aanwezige Cd^{2+} -ionen, d.w.z. onder vorming van vrije elektronen.

Fig. 12 geeft de concentratie van vrije elektro-

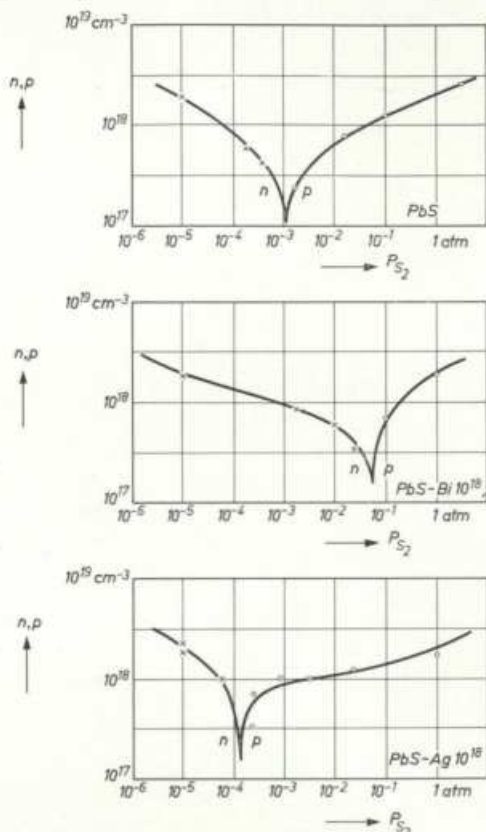


Fig. 12. Concentraties van elektronen (n) en gaten (p) in zuiver PbS (bovenste figuur), in PbS met 10^{18} Bi-atomen per cm^3 (middelste figuur), en in PbS met 10^{18} Ag-atomen per cm^3 (onderste figuur), als functie van de zwaveldruk P_{S_2} gedurende het verhitten op 1000°K . De concentraties zijn gemeten na snelle afkoeling der preparaten. Langs beide assen zijn logaritmische schalen gebruikt.

nen (n) en die van gaten (p) weer in verontreinigd en in zuiver PbS dat bereid is bij 1000°K onder verschillende zwaveldrukken. Deze concentraties zijn na snelle afkoeling tot kamertemperatuur door middel van het Hall-effect bepaald ⁴²⁾. Voor zuiver PbS heeft men een vrijwel symmetrische figuur, die een scherp minimum van de concentraties van de ladingdragers vertoont bij een bepaalde S_2 -druk. Voor hogere en voor lagere S_2 -drukken nemen de concentraties snel toe om verderop een constante helling te bereiken overeenkomend met een $(P_{\text{S}_2} \mp 1/4)$ -afhankelijkheid. De stof vertoont een geleidingsvermogen van het N-type in het gebied van lage S_2 -drukken en een geleidingsvermogen van het P-type in het gebied van hoge S_2 -drukken. Als er Bi-ionen

(Bi_{Pb}^+) aanwezig zijn, is er een zeker gebied van drukken waarin de concentratie (n) van de vrije elektronen constant is en gelijk aan die van de toegevoegde Bi-ionen. Op overeenkomstige wijze vindt men voor kristallen die Ag-ionen (Ag_{Pb}^+) bevatten, een gebied met een constant blijvende concentratie (p) van de gaten gelijk aan die van de toegevoegde zilverionen. In deze gebieden van S_2 -drukken zijn dus de vreemde ionen ingebouwd volgens het principe van de geleide valentie. Bloem ⁴²⁾ was in staat al de reeds genoemde en andere hier niet te behandelen verschijnselen met behulp van de bovengenoemde beschouwingen bevredigend te verklaren.

Voor zuivere stoffen maken deze samenhangen de bepaling mogelijk van het dikwijls zeer nauwe gebied van stabiliteit van een verbinding ten opzichte van andere fasen, als functie van de samenstelling van de gasfase en van de temperatuur, langs het driefazen-evenwicht vaste halfgeleider - gasfase - andere vloeibare of vaste fase. Fig. 13 geeft als voorbeeld de grenzen van stabiliteit van vast SnS als functie van de temperatuur ⁶³⁾. De partiële druk van de S_2 -moleculen in de coëxisterende gasfase is in deze figuur eveneens weergegeven.

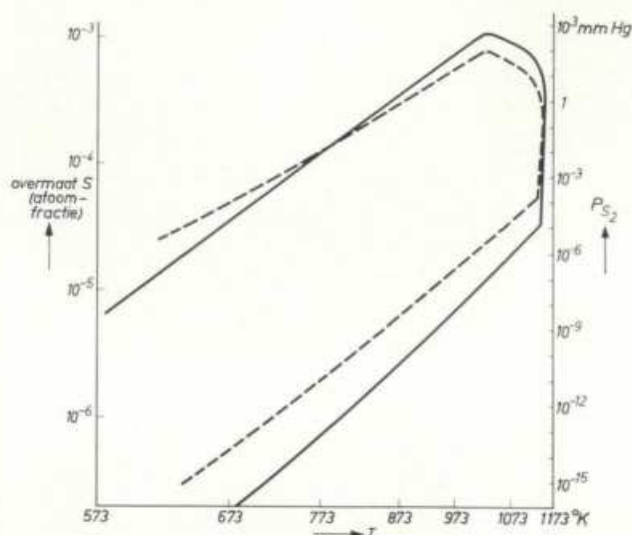


Fig. 13. De grenzen van het stabiliteitsgebied van vast SnS. De getrokken kromme (linker verticale schaal) geeft de samenstelling weer van vast SnS bij het driefazen-evenwicht: vast SnS - gasfase - andere vloeibare of vaste fase, als functie van de temperatuur T . De samenstelling is gegeven in atoomfracties van overmaat S-atomen. De gebroken kromme (rechter verticale schaal) heeft betrekking op de partiële druk P_{S_2} van S_2 -moleculen in de coëxisterende gasfase. T is reciprook uitgezet ($1/T$ -schaal), de grootheden op de verticale schalen zijn logaritmisch uitgezet.

Verfijnde „molecular engineering” in fosforen en overeenkomstige verbindingen

Van Gool ⁵⁵⁾ wees er op dat een van de voordelen van dit soort overwegingen is gelegen in het feit dat de onderzoeker zich eerder het grote aantal mogelijk

heden realiseert dat hem ter beschikking staat om een dikwijls *beperkt* aantal experimentele gegevens te verklaren, en dat de onderzoeker daardoor verhinderd wordt te vlug met verklaringen voor de dag te komen. In CdS b.v. dat chloor (Cl^-) op S^{2-} -plaatsen bevat, kan de voorwaarde van elektro-neutraliteit er zeer wel als volgt uitzien:

$$n + [\text{V}_{\text{Cd}}'] + 2[\text{V}_{\text{Cd}}''] + [(\text{Cl}_\text{s}\text{V}_{\text{Cd}})'] = p + [\text{V}_{\text{s}}'] + 2[\text{V}_{\text{s}}''] + [\text{Cl}_\text{s}'].$$

Het is duidelijk dat er in principe een groot aantal vereenvoudigde vormen van deze vergelijking mogelijk zijn. Uit de kennis van die vereenvoudigde vormen die in werkelijkheid voorkomen, als functie van de partiële drukken van Cl_2 en S_2 in de coëxisterende gasfazen, kunnen zeer veel gegevens omtrent het beschouwde systeem afgeleid worden.

In dit verband gaf Van Gool ⁶⁴⁾ voorbeelden hoe de partiële drukken van de componenten in de gasfaze uit thermodynamische gegevens berekend kunnen worden. In het bijzonder berekende hij hoe, in het systeem $\text{ZnS-H}_2\text{S/H}_2/\text{Cl}_2$, als functie van de temperatuur, de partiële drukken P_{Cl_2} , P_{S_2} en P_{Zn} afhangen van de begindrukken $P_{\text{H}_2\text{S}}$, P_{H_2} en P_{HCl} of P_{Cl_2} van de gasstroom die met ZnS in evenwicht gebracht zal worden.

Uit het voorgaande zal duidelijk zijn dat door op deze wijze de samenstelling van de coëxisterende gasfaze te beheersen, alsmede door een grondige zuivering en nauwkeurige „doping” van de verbinding, in principe een zeer verfijnde „molecular engineering” mogelijk is. Zoals reeds is opgemerkt, is het aantal mogelijke imperfecties evenwel aanzienlijk. Het is daarom te begrijpen dat, al is op het ogenblik de scheikundige bij machte allerlei fosforen, fotogeleders en dergelijke elementen met bijna elke gewenste eigenschap te bereiden, de verklaring van wat hij daarbij werkelijk aan het doen is in vele gevallen nog ontbreekt. Slechts een zorgvuldige studie van de correlatie tussen een *groot aantal* verschillende fysische eigenschappen (zoals: lichtabsorptie, luminescentie en haar afhankelijkheid van de temperatuur en van de intensiteit van excitatie, „glow curves”, fotogeleiding, doving, elektronen-spinresonantie) en de precieze chemische samenstelling zoals deze met de bovengenoemde „molecular engineering” bereikt kan worden, kan ten slotte tot een werkelijk inzicht leiden in de aard van de voor de verschillende verschijnselen verantwoordelijke centra.

Gassen en metalen

Inwendige wrijving; het verschijnsel van Snoek

In 1939 vond Snoek één van de oorzaken van de

inwendige wrijving in vaste stoffen ⁶⁵⁾. Als voorbeeld zullen we een oplossing van stikstof in ijzer behandelen. Bij afwezigheid van mechanische spanningen zijn de stikstofatomen volledig willekeurig over de interstities verdeeld. Indien nu een eenassige mechanische spanning op het ijzer wordt uitgeoefend, zal een gedeelte van de stikstofatomen naar naastliggende interstitiële plaatsen springen als hun energie daar lager is. De relaxatietijd τ voor deze herverdeling wordt bepaald door de sprongfrequentie van de stikstofatomen, en ten gevolge hiervan wordt de temperatuurafhankelijkheid van τ beschreven door:

$$\tau = \tau_0 e^{U/RT},$$

waarin U de activeringsenergie voorstelt van de diffusie van de stikstofatomen. Vanwege deze relaxatietijd τ blijft de vervorming, veroorzaakt door dit springen van de stikstofatomen, wat achter in de tijd bij de spanning, indien een periodiek veranderende kracht op het metaal wordt uitgeoefend. Het logaritmisch decrement van de mechanische trillingen gedeeld door π wordt de verlieshoek genoemd (Q^{-1}). De maximale verlieshoek treedt op voor $\omega\tau = 1$, als ω de hoekfrequentie voorstelt van de opgelegde mechanische trilling.

Het verschijnsel van de inwendige wrijving is over een breed veld van onderzoek toegepast ⁶⁶⁾, hoofdzakelijk om twee redenen. Ten eerste kan met behulp van deze methode informatie verkregen worden ten aanzien van bewegingen over zeer kleine afstanden, aangezien slechts sprongen over atoomafstanden nodig zijn om anelastische effecten voort te brengen. Zo waren Fast en Verrijp ⁶⁷⁾ in staat de diffusieconstante van stikstof in ijzer te meten van kamertemperatuur tot -35°C . De diffusieconstante heeft dan waarden die liggen tussen 10^{-16} en 10^{-20} cm^2/s . Ten tweede is het effect reeds merkbaar bij zeer kleine concentraties van de springende atomen, en evenredig hiermede. Concentraties van ongeveer 0,001 gewichtsprocent N in Fe kunnen met een nauwkeurigheid van 10% vastgesteld worden ⁶⁸⁾.

Toepassing van de inwendige wrijving bij het onderzoek van het systeem Fe-Mn-N

Fast en Verrijp hebben met behulp van de inwendige wrijving de systemen Fe-C en Fe-N uitvoerig onderzocht. Slechts één voorbeeld zal hiervan gegeven worden, nl. de wisselwerking tussen interstitiële stikstof en substitutioneel Mn ⁶⁹⁾. Fig. 14 geeft de verlieshoek weer als functie van de temperatuur in Fe-N en in Fe-Mn-N met respectievelijk 0,5 en 2% Mn, en met in alle drie gevallen een stikstofconcentratie van 0,03%. Men ziet dat de inbouw

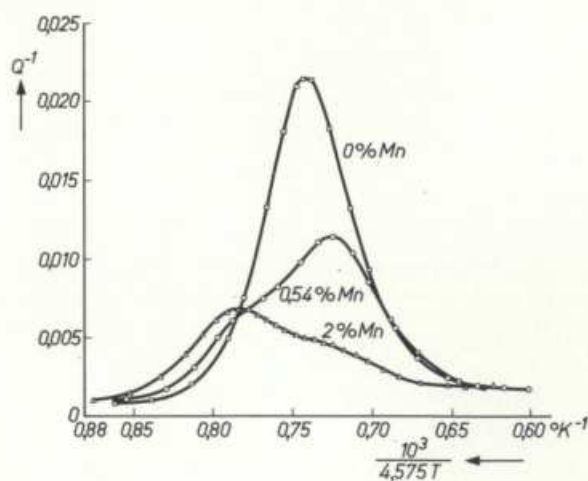


Fig. 14. Inwendige wrijving van ijzer dat 0,03% N te samen met 0%, 0,5% en 2% Mn bevat. De verlieshoek Q^{-1} is weergegeven als functie van de temperatuur T . De maximale verlieshoeken liggen bij 22, 29 en 6 °C. Oscillatieperiode 1,2 s.

van Mn nieuwe maxima te voorschijn roept links en rechts van die van het zuivere Fe-N-systeem. Het nieuwe maximum bij de hogere temperatuur wordt toegeschreven aan een stikstofatoom dat zijn sprong uitvoert in de naaste omgeving van een Mn-atoom. De vrije vormingsenthalpie van $Mn_{2,5}N$ is groter dan die van Fe_4N , en daarom is de veronderstelling redelijk dat een N-atoom vlak bij een Mn-atoom vaster gebonden is en de overeenkomstige maximale verlieshoek daardoor bij een hogere temperatuur ligt. Het nieuwe maximum links van dat in het zuivere Fe-N-systeem, dat pas optreedt bij hogere Mn-concentraties, schrijft men toe aan N-atomen die in de naaste omgeving van een Mn-atoompaar springen. Het kan aannemelijk worden gemaakt dat voor de sprongen rond zo'n paar minder activeringsenergie nodig is dan voor die in het zuivere ijzer⁶⁶). De binding van een stikstofatoom aan zulk een paar Mn-atomen is echter nog sterker dan die aan een enkel Mn-atoom. Dit kunnen we zien in fig. 15, waar de verlieshoek als functie van de temperatuur wordt weergegeven voor preparaten die gedurende ver-

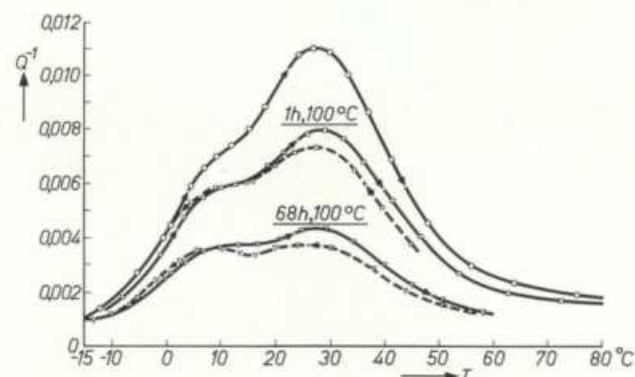


Fig. 15. Inwendige wrijving van ijzer dat 0,03% N bevat en 0,54% Mn. Bovenste kromme: vóór het temperen; andere krommen: na 1 uur en 68 uur temperen op 100 °C ten einde de stikstof gedeeltelijk in de vorm van Fe_4N te precipiteren.

schillende tijden op 100 °C getemperd zijn. Gedurende deze tempering precipiteert de stikstof in de vorm van Fe_4N . Men ziet dat de vrije stikstofatomen en de stikstofatomen in de buurt van een enkel Mn-atoom sneller verdwijnen dan een stikstofatoom verbonden aan een Mn-paar.

Precipitatieharding en inwendige oxydatie

De precipitatie van N in de vorm van zeer kleine deeltjes Fe_4N veroorzaakt een aanzienlijke toename van de hardheid van ijzer. Deze zg. precipitatieharding komt niet alleen voor in het systeem Fe-N (of Fe-C), maar ook in een aantal andere gevallen. Zilver dat wat Mg (1,5 at.%) bevat, kan b.v. aanzienlijk harder gemaakt worden door het Mg inwendig te oxyderen. De vickershardheid neemt dan toe van 40 tot 170. De experimentele en theoretische aspecten van deze inwendige oxydatie zijn onderzocht door Meijering en Druyvesteyn^{70,71,72}). De voorwaarden voor inwendige oxydatie zijn duidelijk:

- 1) De zuurstof moet sneller in het metaal diffunderen dan het vreemde metaal eruit. Dit komt neer op de voorwaarde

$$C_O D_O \gg C_{Me} D_{Me},$$

waarin C_O de oppervlakconcentratie van de zuurstofatomen voorstelt, die in evenwicht is met de O_2 -druk of met een uitwendige oxydelaaag (b.v. MeO), C_{Me} de volumeconcentratie van het vreemde metaal en D_O en D_{Me} de diffusieconstanten.

- 2) De affiniteit voor zuurstof van het opgeloste metaal moet groter zijn dan die van het moedermetaal. Met betrekking tot het eerste punt kan opgemerkt worden dat D_O van de interstitiële zuurstofatomen in de meeste metalen groter zal zijn dan D_{Me} van de substitutionele metaalatomen, maar dat slechts in een gering aantal metalen zoals Ag, Cu, Ni, Fe, Ti en Zr de oplosbaarheid van zuurstof groot genoeg is om, voor een geschikte C_{Me} , te voldoen aan $C_O D_O \gg C_{Me} D_{Me}$.

De tweede voorwaarde kan niet vervuld worden door Ti en Zr. Daarom kan eigenlijk alleen bij Ag, Cu, Ni en Fe inwendige oxydatie toegepast worden. Volgens Meijering en Druyvesteyn wordt de concentratie van de moleculen van het oxyde (C_{ox}) voor een opgelost tweewaardig metaal Me in goede benadering gegeven door:

$$C_{ox} = C_{Me} (1 + C_{Me} D_{Me} / C_O D_O).$$

De concentratie van de moleculen van het oxyde is volgens deze vergelijking wat groter dan die van de oorspronkelijke atomen van het vreemde metaal. In

een metaal dat onderhevig is geweest aan een volledige inwendige oxydatie kan dit dus niet over het gehele volume het geval zijn. Men moet daarom verwachten dat in een reep metaal die vanaf beide kanten inwendig geoxydeerd wordt, in het midden een gebied moet ontstaan dat vrijwel geen inwendige oxydatie vertoont. Dit gebied kan door etsen zichtbaar gemaakt worden en is duidelijk te zien in fig. 16. Deze „inwendige oxydatie” kan als een bijzonder gevoelig middel gebruikt worden om te onderzoeken of atomen zoals O en F kunnen oplossen en diffunderen in bepaalde metalen. Hierbij wordt gebruik gemaakt van het feit dat door etsen de overgang tussen het „geoxydeerde” deel van het metaalvolume en het deel dat nog niet door het diffunderende atoom bereikt is, duidelijk zichtbaar gemaakt kan worden, zoals we al hebben gezien.

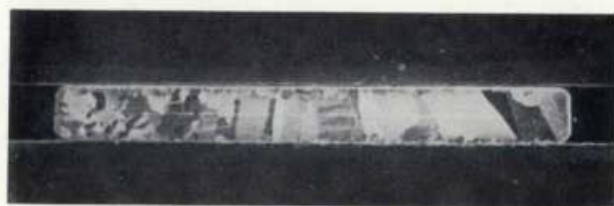


Fig. 16. Ag met 1,5 gew. % Mn, 48 uur op 800 °C in lucht geëts met $\text{NH}_4\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$. Vergroting 10×. Hoewel de oxydatie volledig is, blijft er een „middellijn”, arm aan oxyde, bestaan.

Deze methode werd toegepast door Meijering⁷³⁾ om aan te tonen dat fluor kan oplossen en diffunderen in zilver. Met behulp van dit verschijnsel kon ook worden aangetoond dat zuurstof in ijzer oplost⁷⁴⁾, hoewel de concentraties zo klein zijn dat zelfs door middel van de methode van inwendige wrijving de aanwezigheid ervan niet kan worden opgespoord.

Precipitatie in ferromagnetische legeringen

Precipitatie is ook een belangrijk verschijnsel bij het maken van ferromagnetische legeringen met hoge waarden van $(BH)_{\text{max}}$. Door middel van deze methode namelijk is het mogelijk deeltjes te bereiden die klein genoeg zijn om slechts een enkel gebiedje van Weiss te bevatten, en die omsloten zijn door niet-magnetisch materiaal. In ferromagnetische legeringen van een bijzondere samenstelling blijken deze kleine deeltjes de vorm van naalden aan te nemen, waardoor de demagnetisatie zo klein mogelijk wordt. Wanneer nu deze precipitatie uitgevoerd wordt in een eenkristal en gelijktijdig een statisch magnetisch veld aangelegd wordt, kunnen alle naalden en hun magnetische momenten gericht worden. Op deze wijze kan materiaal met een zeer hoge waarde van $(BH)_{\text{max}}$ verkregen worden (Jonas, Meerkamp van Embden, Luteijn, De Vos, Fast en De

Jong^{75,76,77)}). Met legeringen die bestaan uit 35% Fe, 34% Co, 15% Ni, 7% Al, 4% Cu en 5% Ti, waarin naalden rijk aan Fe en Co geprecipiteerd worden in een matrix rijk aan Ni en Al, zijn waarden van $(BH)_{\text{max}}$ van 12×10^6 gauss $\times$ oersted bereikt. Met welk een volmaaktheid dit richten van de naalden plaatsvindt, kan bestudeerd worden met behulp van de elektronenmicroscop (De Jong, Smeets en Haanstra⁷⁸⁾). Fig. 17 laat twee van dergelijke opnamen zien.

Bereiding van zuivere metalen door ontleding van een gasvormige verbinding

We hebben hierboven reeds even het gebied van de wisselwerking tussen gassen en metalen betreden. Dit is eveneens een gebied van onderzoek dat uitvoerig is bewerkt door medewerkers van het Philipslaboratorium. Het onderzoek begon in 1923 toen Van Arkel^{79,80)} een methode publiceerde om zuiver monokristallijn wolfram te bereiden. Bij deze methode wordt het wolfram neergeslagen op een hete draad, met een temperatuur van b.v. 1600 °C, door dissociatie van WCl_6 . Het Cl_2 dat door deze dissociatie is vrijgekomen, reageert dan met W-poeder of W-draad in een ander gedeelte van het reactievat, dat een temperatuur van 400 °C heeft. Het reactieproduct WCl_6 dissocieert weer aan de hete draad, en zo is het begrijpelijk dat door middel van een betrekkelijk kleine hoeveelheid chloor een grote hoeveelheid W-poeder omgezet kan worden in een dikke draad van monokristallijn wolfram met een zeer grote zuiverheid. In de laatste jaren heeft deze methode weer nieuwe aandacht gekregen onder de naam van transportreacties in de gasfase, omdat hiermee dikwijls zuivere monokristallen of epitactische lagen van verbindingen kunnen worden bereid. Korte tijd na Van Arkel's onderzoekingen toonden De Boer en Fast aan dat deze methode, wanneer in plaats van de chloriden de tetraiodiden gebruikt worden, toegepast kan worden om zuiver Ti, Zr en Hf te bereiden^{81,82,83,84,85)}. Tot dat tijdstip had men gedacht dat deze metalen uit zichzelf zeer bros waren. Het bleek echter dat als zij maar door middel van de juist genoemde methode bereid waren, deze metalen in werkelijkheid zeer ductiel zijn. De zo verkregen metalen waren inderdaad zo ductiel dat zelfs de mogelijkheid van een andere kristalmodificatie niet uitgesloten werd. Het bleek echter alras dat de brosheid van deze metalen wordt veroorzaakt door de aanwezigheid van kleine concentraties van zuurstof, stikstof of waterstof. In poedervormig Zr b.v. is elke korrel bedekt met een dunne laag oxyde. Bij persen en sinteren van dit poeder lost het oxyde in het metaal op, het hiermede bros makend.

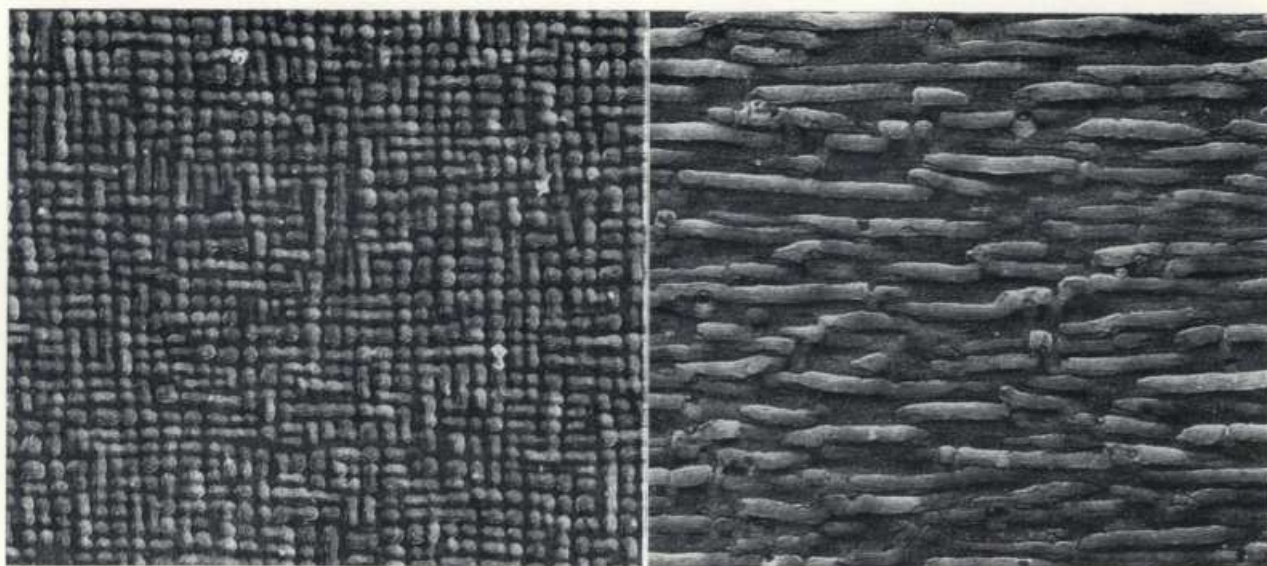


Fig. 17. a) Opname met de elektronenmicroscop van „Ticonal” met $(BH)_{\max} = 11 \times 10^6$ gauss $\times$ oersted. De regelmatige rangschikking van de geprecipiteerde naaldjes in een vlak loodrecht op hun lengte is duidelijk zichtbaar.
b) Als (a), maar nu is de rangschikking van de naaldjes zichtbaar in een vlak evenwijdig aan hun lengte.

Ti, Zr en Hf kunnen zelfs zeer grote hoeveelheden van deze gasen oplossen. Zo kan Zr tot ongeveer 30 at. % zuurstof in oplossing bevatten⁸⁶⁾, en tot ongeveer 20 at. % stikstof⁸⁷⁾. Ook Ti en Hf kunnen zeer veel zuurstof en stikstof in vaste oplossing bevatten.

Permeatie van gasen door metalen

De opgeloste atomen van deze gasen (zuurstof en stikstof) bevinden zich op interstitiële plaatsen en hebben een betrekkelijk grote beweeglijkheid. Zijn ze echter eenmaal in het metaal (Ti, Zr of Hf) opgelost, dan is het onmogelijk ze er door middel van verhitting weer uit te krijgen. Dit is de oorzaak waardoor zuurstof en stikstof, hoewel hun oplosbaarheid en beweeglijkheid groot zijn en hun absorptie snel, niet door Ti, Zr of Hf kunnen heendringen. Immers, voor dat proces moet ook nog een derde stap mogelijk zijn, nl. het uittreden. De permeatie van gasen door metalen is een aspect van de wisselwerking tussen gasen en metalen dat in dit laboratorium uitvoerig is onderzocht⁸⁸⁾. Als een verder voorbeeld kan het geval van waterstof en ijzer⁸⁹⁾ worden besproken. Het is in zekere zin het omgekeerde van dat van zuurstof en zirkonium. De Boer en Fast konden aantonen dat waterstofatomen zich zeer gemakkelijk in het tussenrooster van ijzer kunnen verplaatsen en ook gemakkelijk dit metaal weer kunnen verlaten en tot H_2 -moleculen recombineren. Het is echter alleen dan mogelijk om H-atomen bij kamertemperatuur in het ijzer te brengen indien men op de een of andere wijze H_2 -moleculen eerst in atomen dissocieert. Dit kan gedaan worden of door

dissociatie aan een hete W-draad, of uit een oplossing in water met een voldoende lage pH, zodat H-atomen aan het Fe-oppervlak gevormd kunnen worden. Uit deze en nog andere verschijnselen bleek dat de permeatie van gasen door metalen een ingewikkeld proces is, dat op zijn minst uit vijf opeenvolgende stappen bestaat, nl.: adsorptie, absorptie, diffusie, desabsorptie en desadsorptie, waarvan de theoretische aspecten zorgvuldig werden geanalyseerd.

Onderzoekingen aan getters; het systeem Th-Al-Ce

Zoals reeds is aangeduid, wordt Zr, dat bij hoge temperaturen grote hoeveelheden gas kan oplossen, bij lage temperaturen beschermd door een dun, ondoordringbaar laagje oxyde. Deze eigenschap maakt het metaal zeer bruikbaar als getter. Bij lage temperatuur kan het in een buis gemonteerd worden en later op elk geschikt ogenblik verhit worden om dan gasen te absorberen. Het is duidelijk dat getters een voorwerp van onderzoek zijn in dit laboratorium, dat werkt voor een industrie waarin de vacuümtechniek zo'n belangrijke rol speelt. Zo is er veel werk gestoken in een onderzoek om de getterwerking van de zg. Ceto-getter beter te begrijpen. Deze getter bestaat hoofdzakelijk uit Th, Al en Ce. Om de getter te bestuderen, onderzocht Van Vucht⁹⁰⁾ de binaire systemen Th-Al, Al-Ce en Ce-Th, en ook het ternaire systeem Th-Al-Ce, met behulp van röntgenanalyse en thermoanalytische en metallografische methodes. Hij vond dat zuiver Ceto de structuur heeft van de intermetallische verbinding Th_2Al waarvan ongeveer een kwart van de Th-atomen vervangen is door Ce-atomen.

Absorptie van waterstof in Th_2Al

Om de werking van dit type getter meer gedetailleerd te leren kennen, werd de absorptie van H_2 door de goed gedefinieerde verbinding Th_2Al nauwkeurig onderzocht door middel van de bepaling van waterstofabsorptie-isothermen bij verschillende temperaturen, röntgendiffractie van waterstofhoudend Th_2Al , neutronendiffractie van deuteriumhoudend Th_2Al en magnetische protonresonantie van in Th_2Al opgeloste waterstof ⁹¹). Hierbij werd gevonden dat de eenheidscel van Th_8Al_4 naast andere interstities zestien equivalente interstities bevat die tetraëdrisch door Th-atomen zijn omringd en paarsgewijze voorkomen, zodanig dat ze een tetraëdervlak gemeen hebben, en wel dat vlak dat evenwijdig loopt aan de basis van de eenheidscel (fig. 18). De verbinding kan waterstof opnemen tot de samenstelling $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_{15,4}$, waarbij de waterstofatomen dan alle in de bovengenoemde interstities aanwezig zijn.

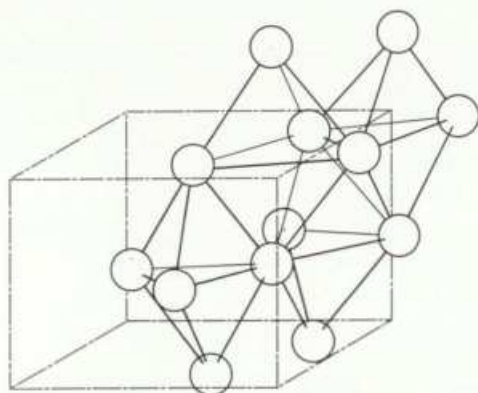


Fig. 18. Structuur van Th_2Al . Alleen de Th-atomen zijn getekend. De rangschikking van de tetraëdrische gaten als van tweelinginterstities is duidelijk zichtbaar.

Metingen van de waterstofevenwichtsdrücken voor verschillende temperaturen geven isothermen (fig. 19) die bij 225 °C drie buigpunten vertonen. Twee van deze buigpunten, liggende bij ongeveer $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_4$ en $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_{12}$, werden beschouwd als overblijfselen van plateaus corresponderend met tweefazengebieden optredend bij lagere temperaturen. Dit zou dan betekenen dat $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_8$ beschouwd moet worden als een intermediair hydride. Röntgendiffractie toonde aan dat er bij kamertemperatuur inderdaad een splitsing in twee fasen optreedt, die ongeveer de samenstellingen Th_8Al_4 en $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_8$ hebben. Een overeenkomstig gebied tussen $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_8$ en $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_{15,4}$ kon evenwel op deze wijze niet aangetoond worden, zelfs niet bij 83 °K. De veranderingen in de afmetingen van de eenheidscel bij toenemend waterstofgehalte schijnen erop te wijzen dat bij $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_8$ de waterstofatomen een sterke neiging tot ordening hebben.

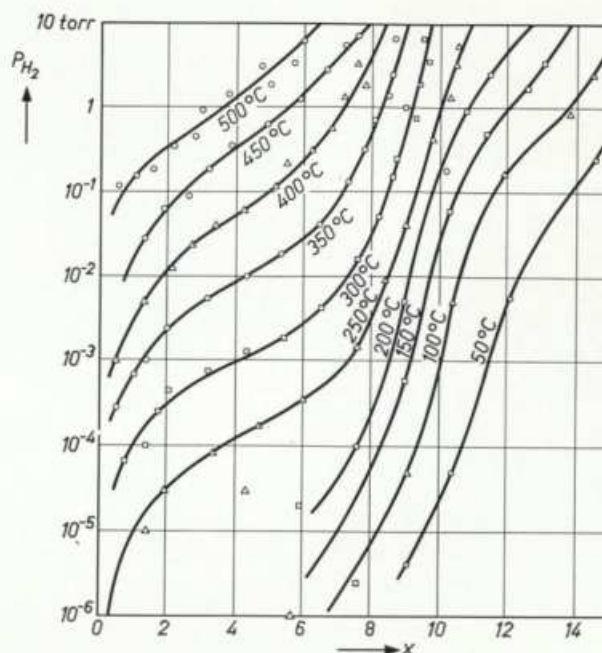


Fig. 19. Isothermen van de evenwichtsdrücken van waterstof (P_{H_2}) boven $\text{Th}_8\text{Al}_4\text{H}_x$. Deze drücken zijn logaritmisch uitgezet tegen x .

Thermodynamica

De door Van Vucht verkregen resultaten konden verder worden ondersteund door een meer theoretische analyse van de waterstofabsorptie-isothermen ⁹²). Een algemene uitdrukking voor de vrije enthalpie kon worden opgesteld, waarin de enthalpie een term bevat die overeenkomt met de energie van een enkel waterstofatoom in een „dubbele interstitie” en een term overeenkomend met de energie van twee waterstofatomen in een „dubbele interstitie”. Als ϑ de fractie is van de interstities die door een waterstofatoom bezet zijn en q de fractie van de bezette interstities die naast zich een lege tweelinginterstitie hebben, dan hebben we bij evenwicht:

$$\frac{\partial G}{\partial q} = 0 \quad \text{en} \quad \frac{dG}{d\vartheta} = \frac{1}{2}\mu_{\text{H}_2} = \frac{1}{2}\mu_{\text{H}_2}^0 + \frac{1}{2}RT \ln P_{\text{H}_2}.$$

Uitgaande van deze voorwaarden kan een algemene uitdrukking voor de waterstofabsorptie-isothermen als functie van de concentratie in het kristal afgeleid worden. Uit een vergelijking van de vormen van deze theoretisch mogelijke isothermen met die van de experimenteel bepaalde, kon Van Vucht besluiten dat er inderdaad een sterke neiging bestaat voor de waterstofatomen om de paren van interstities telkens slechts met één waterstofatoom te bezetten, in overeenstemming met datgene wat uit de verandering van de afmeting van de eenheidscel als functie van het waterstofgehalte kon worden afgeleid.

Retrograde soliduslijnen

Deze methode van de zuiver thermodynamische redenering is dikwijls met succes toegepast door Meijering⁹³). Zo was het b.v. mogelijk een uitdrukking af te leiden die ons in staat stelt uit de meestal bekende gegevens van het eutectische punt te voorspellen of in een T, x -projectie van een solidus-liquidus-evenwicht van een binair systeem, de soliduslijn een retrograad karakter zou vertonen of niet^{93,94}). Het beginsel is zeer eenvoudig. In een binair systeem zijn twee fasen, vast en vloeibaar, met samenstellingen gegeven door x_s en x_L atoomfracties, met elkaar in evenwicht wanneer bij een bepaalde temperatuur geldt:

$$\frac{dG_s}{dx_s} = (G_s - G_L)/(x_s - x_L) = \frac{dG_L}{dx_L}.$$

Voor coëxisterende fasen moeten deze betrekkingen ook bij veranderde temperatuur geldig zijn. Deze eisen, te zamen met de bekende uitdrukkingen $\partial G/\partial T = -S$ en $G = H - TS$, leveren ons de uitdrukking van Van der Waals voor coëxisterende fasen:

$$\frac{dx_s}{dT} = \frac{dS_s/dx_s - (S_s - S_L)/(x_s - x_L)}{d^2G_s/dx_s^2}.$$

Hiervan is de noemer altijd positief. Retrograde soliduslijnen ($dx_s/dT > 0$) zullen dus gevonden worden als de teller positief is. Als we nu in dit binaire systeem voor de meng-entropie alleen de meng-entropie van Gibbs nemen, dan krijgen we voor S_s en S_L de krommen in fig. 20. Op deze manier was het mogelijk vele retrograde soliduslijnen te verklaren en andere te voorspellen. Met behulp van fig. 20 kon b.v. voorspeld worden dat het aantal retrograde soliduslijnen sterk zou toenemen als door toepassing van fijnere methodes de bepaling van zeer kleine oplosbaarheden in de vaste fase mogelijk zou zijn geworden, een voorspelling die in de loop der jaren voor germanium en silicium uitvoerig waar gemaakt kon worden.

Regulaire oplossingen; het systeem Ni-Cu-Cr

Een vruchtbaar hulpmiddel in dit soort thermodynamische beschouwingen^{95,96,97,98}) is de idee van regulaire oplossingen. Voor binaire regulaire oplossingen wordt de vrije enthalpie als volgt gedefinieerd:

$$G = ax(1-x) + RT[x \ln x + (1-x) \ln (1-x)],$$

d.w.z. behalve de term voor de meng-entropie wordt ook nog de eenvoudigste vorm voor een term van meng-enthalpie in beschouwing genomen. Voor een ternair regulair systeem heeft men dan:

$$G = axy + bxz + cyz + RT(x \ln x + y \ln y + z \ln z),$$

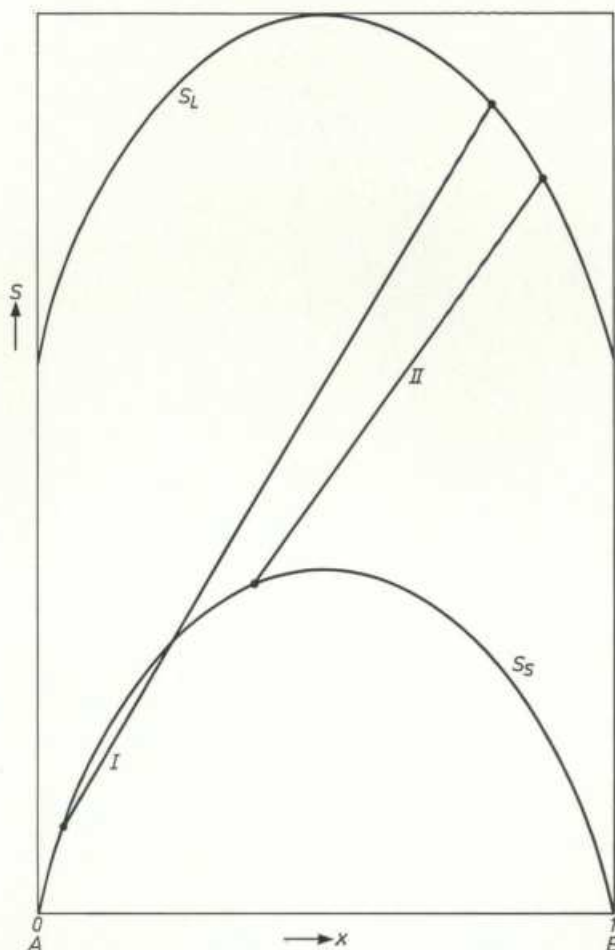


Fig. 20. De onderste en de bovenste kromme geven de entropieën S_s en S_L weer van respectievelijk de vaste en vloeibare fase als functie van de atoomfractie x van B in het binaire systeem A-B. De uitdrukking van Gibbs voor de meng-entropie is in beide gevallen toegepast, en voor de smelt-entropie is de waarde 1,1 R per mol genomen. Bij toepassing van Van der Waals' vergelijking voor coëxisterende fasen ziet men dat in voorbeeld I geldt $dx_s/dT > 0$, d.w.z. er is een retrograde soliduslijn, maar dat dit in voorbeeld II niet het geval is.

waarin x , y en z de atoomfracties van de drie componenten voorstellen. Het nut van deze betrekkelijk eenvoudige functie kon duidelijk voor het systeem Cu-Ni-Cr bewezen worden. Oppervlakkig geredeneerd zou, uitgaande van de bekende binaire systemen, tussen ruimtelijk gecentreerd kubisch Cr en vlakken-gecentreerd kubisch Ni en Cu het ternaire diagram van fig. 21a verwacht kunnen worden, d.w.z. een klein ruimtelijk gecentreerd gebied in de Cr-hoek en een vlakken-gecentreerd gebied langs de Cu-Ni-kant, met daartussen een tweefazengebied. Echter, metallografische en röntgendiffractie-onderzoekingen^{99,100}) brachten het bestaan van een uitgebreid gebied van een driefazenevenwicht aan het licht: een Cr-rijke ruimtelijk gecentreerde fase en twee vlakken-gecentreerde fasen (fig. 21b). Het bleek nu mogelijk de waarden van de constanten a , b en c uit de gegevens van de binaire systemen Ni-Cr, Cu-Ni

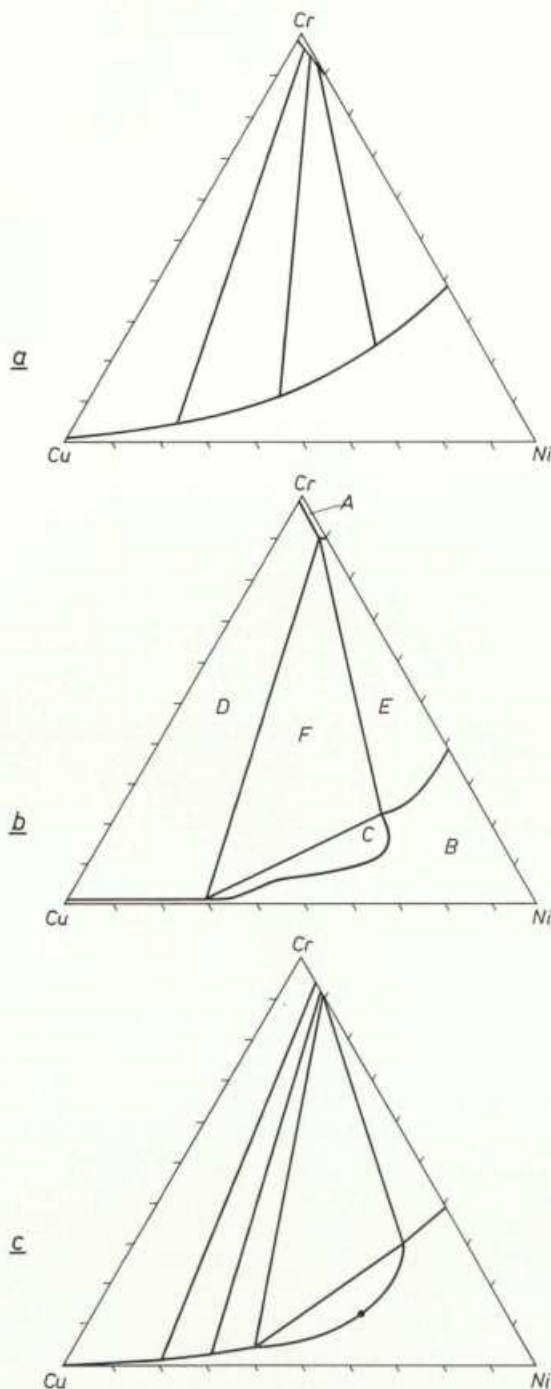


Fig. 21. a) Fazendiagram van het systeem Cu-Ni-Cr bij 930 °C zoals dit verwacht kan worden uitgaande van een eenvoudige extrapolatie van de respectieve binaire randsystemen. b) Het werkelijke fazendiagram van het systeem Cu-Ni-Cr bij 930 °C zoals dit experimenteel bepaald is. A: één fase; ruimtelijk gecentreerd. B: één fase; vlakken-gecentreerd. C: twee fazen; vlakken-gecentreerd. D: twee fazen; ruimtelijk gecentreerd en Cu-rijk vlakken-gecentreerd. E: twee fazen; ruimtelijk gecentreerd en Ni-rijk vlakken-gecentreerd. F: drie fazen. c) Fazendiagram van het systeem Cu-Ni-Cr zoals dit voor 1200 °K berekend is. Tussen de Cr-rijke en Cu-rijke fazen zijn twee connoden getrokken. De punt geeft het kritische punt aan waarbij de Cu-rijke en de Ni-rijke fazen identiek van samenstelling worden.

en Cu-Cr te berekenen. Door ook nog rekening te houden met het verschil in vrije enthalpie tussen ruimtelijk gecentreerd en vlakken-gecentreerd Cr, was het mogelijk, gebruik makende van bovengenoemde uitdrukking voor de vrije enthalpie, een fazendiagram voor 1200 °K te berekenen, dat in menig opzicht met het experimenteel bepaalde overeenkwam (fig. 21c).

In dit betrekkelijk korte hoofdstuk zijn slechts enkele voorbeelden van de toepassing van de thermodynamica gegeven. Het zal echter duidelijk zijn dat in alle gebieden van chemie die in dit artikel besproken zijn, het gebruik van thermodynamische beschouwingen onontbeerlijk is. B.v. het werk van Kröger en Vink en dat van deze auteurs samen met Stieltjes, genoemd op blz. 195/196, is in wezen niets anders dan de toepassing van de thermodynamica op de defectchemie van homogene en heterogene fazenevenwichten. Hetzelfde kan gezegd worden van de berekeningen van Van Gool, die in hetzelfde hoofdstuk zijn behandeld.

Besluit

In dit artikel is een beperkt aantal onderzoeken op het gebied van de chemie van de vaste stof kort behandeld, in de verwachting dat hiermede een indruk verkregen kan worden omtrent het „chemische klimaat” in dit laboratorium. Een belangrijk punt is echter nog niet aangeroerd, en behoort zeker niet over het hoofd gezien te worden. In dit artikel zijn de namen van veel medewerkers van dit laboratorium genoemd. Met nadruk moet vastgesteld worden dat deze onderzoekers niet hadden kunnen bereiken wat zij bereikt hebben, zonder de voortdurende hulp, in de vorm van artikelen, voordrachten en gesprekken, van collega's in andere laboratoria. Slechts enkele van deze collega's zijn hier bij name genoemd. Iedere onderzoeker weet echter dat vooruitgang slechts mogelijk is door een voortdurende samenwerking tussen de wetenschappelijke werkers over de gehele wereld.

LITERATUUR

- 1) E. J. W. Verwey, Z. Kristallogr. **91**, 65, 1935.
- 2) E. J. W. Verwey, J. chem. Phys. **3**, 592, 1935.
- 3) E. J. W. Verwey en M. G. van Bruggen, Z. Kristallogr. **92**, 136, 1935.
- 4) A. E. van Arkel, E. J. W. Verwey en M. G. van Bruggen, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **55**, 331, 1936.
- 5) E. J. W. Verwey, A. E. van Arkel en M. G. van Bruggen, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **55**, 340, 1936.
- 6) J. L. Snoek, New developments in ferromagnetic materials, Elsevier, Amsterdam 1947.
- 7) E. J. W. Verwey en J. H. de Boer, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **55**, 531, 1936.
- 8) J. H. de Boer en E. J. W. Verwey, Proc. Phys. Soc. **49**, extra part, 59, 1937.
- 9) E. W. Gorter, Nature **165**, 798, 1950.
- 10) F. C. Romeijn, Philips Res. Repts. **8**, 304, 1953.

- ¹¹⁾ F. C. Romeijn, Philips Res. Repts. **8**, 321, 1953.
- ¹²⁾ E. W. Gorter, Philips Res. Repts. **9**, 295, 1954.
- ¹³⁾ E. W. Gorter, Philips Res. Repts. **9**, 321, 1954.
- ¹⁴⁾ E. W. Gorter, Philips Res. Repts. **9**, 403, 1954.
- ¹⁵⁾ G. Blasse, Philips Res. Repts., verschijnt binnenkort.
- ¹⁶⁾ E. J. W. Verwey en E. L. Heilmann, J. chem. Phys. **15**, 174, 1947.
- ¹⁷⁾ E. J. W. Verwey, F. de Boer en J. H. van Santen, J. chem. Phys. **16**, 1091, 1948.
- ¹⁸⁾ F. de Boer, J. H. van Santen en E. J. W. Verwey, J. chem. Phys. **18**, 1032, 1950.
- ¹⁹⁾ E. J. W. Verwey en P. W. Haaijman, Physica **8**, 979, 1941.
- ²⁰⁾ P. B. Braun, Nature **170**, 1123, 1952.
- ²¹⁾ G. W. van Oosterhout en C. J. M. Rooijmans, Nature **181**, 44, 1958.
- ²²⁾ C. J. M. Rooijmans, J. inorg. nucl. Chem. **11**, 78, 1959.
- ²³⁾ J. H. van Santen, Philips Res. Repts. **5**, 282, 1950.
- ²⁴⁾ J. H. van Santen en J. S. van Wieringen, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **71**, 420, 1952.
- ²⁵⁾ J. L. Snoek, Physica **8**, 426, 1941.
- ²⁶⁾ E. J. W. Verwey, P. B. Braun, E. W. Gorter, F. C. Romeijn en J. H. van Santen, Z. phys. Chem. **198**, 6, 1951.
- ²⁷⁾ J. J. Went, G. W. Rathenau, E. W. Gorter en G. W. van Oosterhout, Philips techn. T. **14**, 33, 1952.
- ²⁸⁾ H. P. J. Wijn, Nature **170**, 707, 1952.
- ²⁹⁾ P. B. Braun, Nature **170**, 708, 1952.
- ³⁰⁾ G. H. Jonker, H. P. J. Wijn en P. B. Braun, Philips techn. T. **18**, 253, 1956.
- ³¹⁾ P. B. Braun, Philips Res. Repts. **12**, 491, 1957.
- ³²⁾ G. H. Jonker, H. P. J. Wijn en P. B. Braun, Proc. Instn. Electr. Engrs. **104 B**, suppl. no. 5, 249, 1957.
- ³³⁾ G. H. Jonker, XVIe Congrès int. Chim. pure et appl., Parijs 1957, section de chimie minérale, blz. 117, Birkhäuser, Bazel 1958.
- ³⁴⁾ J. Smit en H. P. J. Wijn, Ferrites, Philips' Technische Bibliotheek, Eindhoven 1959.
- ³⁵⁾ E. W. Gorter, Proc. Instn. Electr. Engrs. **104 B**, suppl. no. 5, 255, 1957.
- ³⁶⁾ J. A. Lely, Ber. Dtsch. Keram. Ges. **32**, 229, 1955.
- ³⁷⁾ W. F. Kuippenberg, Philips Res. Repts., verschijnt binnenkort.
- ³⁸⁾ F. K. Lotgering, J. inorg. nucl. Chem. **9**, 113, 1959; **16**, 100, 1960/61.
- ³⁹⁾ E. J. W. Verwey, P. W. Haaijman, F. C. Romeijn en G. W. van Oosterhout, Philips Res. Repts. **5**, 173, 1950.
- ⁴⁰⁾ E. J. W. Verwey, in: Semi-conducting materials (Proc. Conf. Univ. Reading), blz. 151, Butterworths, Londen 1951.
- ⁴¹⁾ F. A. Kröger, H. J. Vink en J. van den Boomgaard, Z. phys. Chem. **203**, 1, 1954.
- ⁴²⁾ J. Bloem, Philips Res. Repts. **11**, 273, 1956.
- ⁴³⁾ D. de Nobel, Philips Res. Repts. **14**, 361, 1959.
- ⁴⁴⁾ D. de Nobel, Philips Res. Repts. **14**, 430, 1959.
- ⁴⁵⁾ G. H. Jonker, Proc. int. Conf. on semiconductor physics, Praag 1960, blz. 864, Academic Press, New York 1961.
- ⁴⁶⁾ G. H. Jonker en S. van Houten, Halbleiterprobleme **6**, 118, 1961.
- ⁴⁷⁾ G. H. Jonker, Phys. Chem. Solids **9**, 165, 1959.
- ⁴⁸⁾ J. Volger, Disc. Faraday Soc. no. **23**, 63, 1957.
- ⁴⁹⁾ F. A. Kröger en J. E. Hellingman, J. Electrochem. Soc. **93**, 156, 1948.
- ⁵⁰⁾ F. A. Kröger, J. Opt. Soc. Amer. **39**, 670, 1949.
- ⁵¹⁾ F. A. Kröger en J. E. Hellingman, J. Electrochem. Soc. **95**, 68, 1949.
- ⁵²⁾ F. A. Kröger en J. Dikhoff, Physica **16**, 297, 1950.
- ⁵³⁾ W. Hoogenstraaten, J. Electrochem. Soc. **100**, 356, 1953.
- ⁵⁴⁾ H. A. Klasens, J. Electrochem. Soc. **100**, 72, 1953.
- ⁵⁵⁾ W. van Gool, Philips Res. Repts. Suppl. 1961, no. 3.
- ⁵⁶⁾ Y. Haven, Rep. Conf. Defects in crystalline solids, Bristol 1954, blz. 261, Phys. Soc., Londen 1955.
- ⁵⁷⁾ F. A. Kröger en H. J. Vink, Physica **20**, 950, 1954.
- ⁵⁸⁾ F. A. Kröger en H. J. Vink, in: Halbleiter und Phosphore, Proc. int. Colloq. Garmisch-Partenkirchen 1956, blz. 17, Vieweg, Brunswijk 1958.
- ⁵⁹⁾ F. A. Kröger en H. J. Vink, Solid State Physics **3**, 307, 1956.
- ⁶⁰⁾ F. A. Kröger en H. J. Vink, Phys. Chem. Solids **5**, 208, 1958.
- ⁶¹⁾ F. A. Kröger, F. H. Stieltjes en H. J. Vink, Philips Res. Repts. **14**, 557, 1959.
- ⁶²⁾ G. Brouwer, Philips Res. Repts. **9**, 366, 1954.
- ⁶³⁾ W. Albers en H. J. Vink, Chem. Weekblad, verschijnt binnenkort.
- ⁶⁴⁾ W. van Gool, verschijnt binnenkort.
- ⁶⁵⁾ J. L. Snoek, Physica **6**, 591, 1939.
- ⁶⁶⁾ J. D. Fast, Métaux, Corr., Industr. **36**, 383, 431, 1961.
- ⁶⁷⁾ J. D. Fast en M. B. Verrijp, J. Iron Steel Inst. **176**, 24, 1954.
- ⁶⁸⁾ J. D. Fast en M. B. Verrijp, J. Iron Steel Inst. **180**, 337, 1955.
- ⁶⁹⁾ J. D. Fast, J. L. Meijering en M. B. Verrijp, Métaux, Corr., Industr. **36**, 112, 1961.
- ⁷⁰⁾ J. L. Meijering en M. J. Druyvesteyn, Philips Res. Repts. **2**, 81, 1947.
- ⁷¹⁾ J. L. Meijering en M. J. Druyvesteyn, Philips Res. Repts. **2**, 260, 1947.
- ⁷²⁾ J. L. Meijering, Trans. Metallurg. Soc. AIME **218**, 968, 1960.
- ⁷³⁾ J. L. Meijering, Rev. Métall. **54**, 520, 1957.
- ⁷⁴⁾ J. L. Meijering, Acta metallurgica **3**, 157, 1955.
- ⁷⁵⁾ B. Jonas en H. J. Meerkamp van Embden, Philips techn. T. **6**, 8, 1941.
- ⁷⁶⁾ A. I. Luteijn en K. J. de Vos, Philips Res. Repts. **11**, 489, 1956.
- ⁷⁷⁾ J. D. Fast en J. J. de Jong, J. Phys. Radium **20**, 371, 1959.
- ⁷⁸⁾ J. J. de Jong, J. M. G. Smeets en H. B. Haanstra, J. appl. Phys. **29**, 297, 1958.
- ⁷⁹⁾ A. E. van Arkel, Physica **3**, 76, 1923.
- ⁸⁰⁾ A. E. van Arkel en J. H. de Boer, Z. anorg. allg. Chem. **148**, 345, 1925.
- ⁸¹⁾ J. H. de Boer en J. D. Fast, Z. anorg. allg. Chem. **153**, 1, 1926.
- ⁸²⁾ J. H. de Boer en J. D. Fast, Z. anorg. allg. Chem. **187**, 177, 1930.
- ⁸³⁾ J. H. de Boer en J. D. Fast, Z. anorg. allg. Chem. **187**, 193, 1930.
- ⁸⁴⁾ J. D. Fast, Z. anorg. allg. Chem. **239**, 145, 1938.
- ⁸⁵⁾ J. D. Fast, Z. anorg. allg. Chem. **241**, 42, 1939.
- ⁸⁶⁾ J. H. de Boer en J. D. Fast, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **55**, 459, 1936.
- ⁸⁷⁾ J. D. Fast, Metallwirtschaft **17**, 641, 1938.
- ⁸⁸⁾ J. D. Fast, Chem. Weekblad **38**, 2, 19, 1941.
- ⁸⁹⁾ J. H. de Boer en J. D. Fast, Rec. Trav. chim. Pays-Bas **58**, 984, 1939.
- ⁹⁰⁾ J. H. N. van Vucht, Philips Res. Repts. **16**, 1, 1961.
- ⁹¹⁾ J. H. N. van Vucht, Philips Res. Repts. **18**, 1, 21, 35, 1963.
- ⁹²⁾ J. H. N. van Vucht, Philips Res. Repts. **18**, 53, 1963.
- ⁹³⁾ J. L. Meijering, in: The physical chemistry of metallic solutions and intermetallic compounds, Proc. Symp. Nat. Phys. Lab. 1958, deel 2, publ. no. 5A.
- ⁹⁴⁾ J. L. Meijering, Philips Res. Repts. **3**, 281, 1948.
- ⁹⁵⁾ J. L. Meijering, Philips Res. Repts. **5**, 333, 1950.
- ⁹⁶⁾ J. L. Meijering, Philips Res. Repts. **6**, 183, 1951.
- ⁹⁷⁾ J. L. Meijering en H. K. Hardy, Acta metallurgica **4**, 249, 1956.
- ⁹⁸⁾ J. L. Meijering, Acta metallurgica **5**, 257, 1957.
- ⁹⁹⁾ J. L. Meijering, G. W. Rathenau, M. G. van der Steeg en P. B. Braun, J. Inst. Metals **84**, 118, 1955/56.
- ¹⁰⁰⁾ J. L. Meijering, Chem. Weekblad **51**, 438, 1955.

Samenvatting. Een overzicht wordt gegeven van de bijdragen van het Philips' Natuurkundig Laboratorium tot de chemie van de vaste stof in de afgelopen 40 jaar. Vier gebieden van onderzoek worden kort besproken: kristalchemie, inwendige ladingcompensatie, gassen en metalen, en thermodynamica. De nadruk wordt hierbij gelegd op het feit dat terwijl aan de ene kant fysische (en chemische) eigenschappen van een stof zeer gevoelig van zijn chemische samenstelling kunnen afhangen, aan de andere kant de chemische samenstelling dikwijls alleen door gebruik te maken van deze fysische (en chemische) eigenschappen nauwkeurig kan worden bepaald.

Dit samenspel tussen fysische en chemische methodes, dat ten slotte kan leiden tot een volledig begrip van de samenhang tussen fysische en chemische eigenschappen enerzijds en tot kennis van de precieze chemische samenstelling anderzijds, wordt nagegaan aan de hand van een groot aantal voorbeelden van zeer verschillende aard.

DE PLANNING VAN HET NIEUWE GEBOUWENCOMPLEX VOOR PHILIPS' NATUURKUNDIG LABORATORIUM

door M. J. JANSEN GRATION *).

727.5:658.2:697/699

Onmiddellijk na de Tweede Wereldoorlog werden we in het Natuurkundig Laboratorium te Eindhoven geconfronteerd met een ontzaglijk ruimtekort, en dit op een moment dat een sterke groei van het wetenschappelijk onderzoek verwacht mocht worden. Om in dit ruimtekort op korte termijn te voorzien, werd eerst een van de oudste gebouwen van dit laboratorium (1924) met een etage verhoogd, vervolgens werd een vleugel van drie verdiepingen met een nieuwe collegezaal gebouwd, en ook verrees er een aantal noodgebouwtjes in de tuinen van het laboratorium ¹⁾. Doch met al dit — vrij kostbare — aan-, op- en tussenbouwen konden wij toch de sterke groei van het wetenschappelijk onderzoek niet opvangen, en bovendien was er ten slotte geen plaats meer voor.

Terwijl het in 1924 gebouwde Natuurkundig Laboratorium aanvankelijk in een rustige, landelijke omgeving lag, geraakte het geleidelijk ingesloten als gevolg van de snelle expansie van zowel de Philipsfabrieken als de stedelijke agglomeratie van Eindhoven. Dit veroorzaakte tevens een steeds toenemende hinder voor het wetenschappelijk onderzoek in de vorm van lawaai, trillingen, stof en elektrische storingen.

In 1958 viel het besluit om buiten de stad een nieuw laboratoriumcomplex te bouwen.

Het ontwerpen van het complex

De vragen die bij het ontwerpen van het nieuwe complex rezen, waren:

- 1) Hoe groot moet het nieuwe complex worden, met andere woorden met hoeveel man personeel moet in de naaste toekomst rekening gehouden worden?
- 2) Wordt de gehele bezetting in één gebouw ondergebracht, of verdient het de voorkeur een aantal laboratoria te bouwen?
- 3) Moet het in laag- of hoogbouw uitgevoerd worden?

Ten tijde van het besluit in 1958 bedroeg het personeel ongeveer 1350 man. Als richtlijn voor de bepaling van de grootte van het complex werd dit aantal voor 1970 op 3000 gesteld. Per man werd gerekend met een vloeroppervlakte van 25 m² netto,

d.w.z. uitsluitend voor zijn werkruimte, en 50 m² bruto, met inbegrip van de gangen, liften, toiletten enz. Aanvankelijk is gedacht aan een lage bouw; bij een bebouwingsdichtheid van 20% is dan een terreinoppervlakte van 75 ha nodig.

Het gelukte ons, in de gemeente Waalre, enige kilometers ten zuiden van Eindhoven, een terrein te kopen van ca. 110 ha. Zoals fig. 1 laat zien, wordt

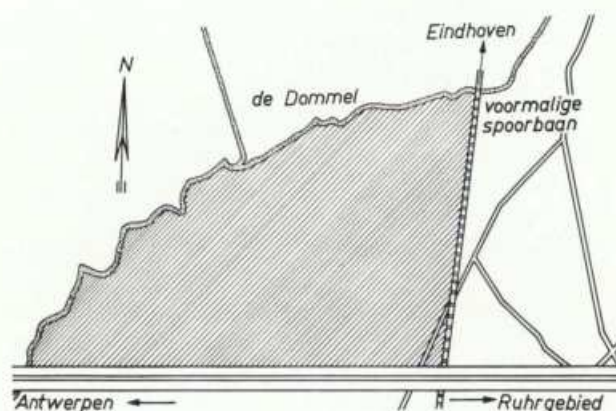


Fig. 1. Plattegrond van het terrein te Waalre waarop het nieuwe complex van het Philips' Natuurkundig Laboratorium wordt gebouwd.

het terrein begrensd door een riviertje, een voormalige spoorbaan, en een hoofdverkeersweg (de E3-weg, van Antwerpen naar het Ruhrgebied). Van de voormalige spoorbaan wordt een verbindingsweg met Eindhoven gemaakt, waarlangs men de overige Philipscomplexen gemakkelijk zal kunnen bereiken. Er komt niet een directe verbinding met de hoofdverkeersweg, teneinde het laboratorium te vrijwaren voor een te grote verkeersdrukte in de nabijheid.

De medewerkers van het laboratorium zijn in een vrij groot aantal werkgroepen verdeeld, die verschillende gebieden van onderzoek bestrijken. Zou het onderbrengen van deze groepen in verschillende gebouwen schade aan het werk toebrengen? Bestudering van dit vraagstuk leidde tot de conclusie dat dit inderdaad verwacht mag worden, daar alle groepen door onderlinge contacten sterk met elkaar verbonden zijn. Men dient hierbij echter twee zaken in het oog te houden: Ook in één groot gebouw zal het moeilijk zijn om alle medewerkers voldoende contactmogelijkheden te geven. De benadeling van de contacten door splitsing in een aantal gebouwen weegt daardoor minder zwaar. Bovendien zou één reusachtig laboratorium onvermijdelijk gedurende

*) Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

¹⁾ Een luchtfoto en een plattegrond van het oude Laboratorium vindt men in Philips techn. T. 13, 98 en 128, 1951.

een aantal jaren gedeeltelijk leeg staan, wat renteverlies betekent. Men kwam tot de slotsom dat splitting in vier „sectoren” verantwoord is.

Onder een sector verstaan we een combinatie van een groot laboratoriumgebouw, één of meer kleinere laboratoria voor bijzondere experimenten, die uit veiligheids- of andere overwegingen niet in het grote laboratorium uitgevoerd kunnen worden, en een werkplaats. Een leeszaal, een collegezaal en een kantine vormen onderdelen van het grote laboratoriumgebouw. Elke sector is aldus als een op zich zelf staande eenheid ontworpen.

Behalve aan deze vier sectoren is gedacht aan een afzonderlijk gebouw in het centrum van het terrein bestemd voor de directie en de algemene diensten. Dit gebouw zal tevens plaats kunnen bieden aan een groot restaurant, een centrale bibliotheek en een ruim auditorium, geschikt voor grote bijeenkomsten en congressen. In het restaurant zullen warme maaltijden genuttigd kunnen worden, terwijl de kantines van elke sector voor koffiemaaltijden bedoeld zijn. De leeszaal van elke sector zal alleen de nieuwste boeken en tijdschriften bevatten, die betrekking hebben op het werkgebied van die sector; in de centrale bibliotheek zal een complete collectie boeken en ingebonden tijdschriften (ook de oudere jaargangen) aanwezig zijn.

Bij nader inzien werd voor de vier grote laboratoria besloten tot middelmatige hoogbouw. Men nam voor deze beslissing in aanmerking dat een hoge bouw gunstiger is voor de contacten tussen de medewerkers dan een lage — mits er voldoende snelle liften zijn. Bij een lage bouw zullen de af te leggen afstanden om elkaar te bereiken een belemmering zijn. Aan de andere kant, hoe hoger de bouw, hoe meer er van de beschikbare vloeroppervlakte gebruikt moet worden voor liften e.d.

Zo hadden we ons een beeld gevormd van de richting waarin gewerkt moest worden, en toen was de tijd aangebroken om met de architecten en bouwkundigen contact te zoeken, teneinde tot een acceptabel ontwerp te komen. Zoals te verwachten was bij een project van deze omvang, waarbij bovendien niet veel steun kon worden ontleend aan ervaring of literatuur, heeft dit veel tijd en moeite gekost. We zullen enig idee geven van de — vaak tegenstrijdige — eisen die met elkaar in overeenstemming moesten worden gebracht.

Zoals reeds aangestipt, werd het van de zijde van het laboratorium van het hoogste belang geacht dat er goede contacten mogelijk zijn tussen de medewerkers. Binnen een sector moeten verder voor hen gemakkelijk bereikbaar zijn: a) de werkplaats, b) de leeszaal, c) de kantine en d) de parkeerplaatsen.

Tussen de sectoren onderling werden overdekte verbindingen wenselijk geacht.

Verder werd de eis gesteld dat er zoveel mogelijk storingvrij gewerkt moet kunnen worden. Dit houdt in: maatregelen tegen lawaai, trillingen, elektrische en magnetische storingen, enz. In verband hiermee werd o.m. verlangd dat de laboratoria op een afstand groter dan 300 m van de hoofdverkeersweg gebouwd zouden worden. Volgens metingen van Amerikaanse experts, die door onze onderzoeken bevestigd zijn, is het lawaai van een „highway” op die afstand gereduceerd tot het gemiddelde achtergrondlawaai van een rustige woonwijk. De experimenteerders wenste men zoveel mogelijk op het noorden te oriënteren, ten einde weinig last van de zon te hebben (temperatuurschommelingen). Ook stof kan een ernstige hinder voor het onderzoek betekenen; het streven naar stofvrijheid heeft ter dege meegesproken bij het tot stand komen van het uiteindelijke ontwerp.

Ten slotte werd als eis gesteld: flexibiliteit van de laboratoria.

Hiertegenover stonden eisen van architectonische en bouwkundige aard, betreffende a) het economisch gebruik van het terrein, b) stedenbouwkundige flexibiliteit, c) esthetische aspecten en d) de overzichtelijkheid van het complex. Enkele van deze eisen mogen hier worden vermeld. Hoewel allereerst ervoor moest worden gezorgd dat op het complex in 1970 ongeveer 3000 man personeel moet kunnen worden gehuisvest, diende voldoende terrein voor een uitbreiding in de verdere toekomst te worden gereserveerd. Het structuurplan moest flexibel genoeg zijn om een dergelijke uitbreiding mogelijk te maken. Verschillende vragen dienden in verband hiermee onder ogen te worden gezien. Welke consequenties voorondergrondse leidingen, verkeersafwikkeling enz. heeft een eventueel veranderen van het structuurplan bij uitbreiding van het complex? Is het mogelijk om zonder wijziging in het structuurplan de bouwmassa, bouwwijze, architectuur van nog te realiseren sectoren anders te kiezen, enz.? Wat de esthetische aspecten betreft: voor de landschappelijke horizon van het meest nabijgelegen gedeelte van Eindhoven (gelukkig maar een kleine wijk) verrijzen binnenkort een aantal hoge gebouwen. Het is daarom van belang dat het laboratoriumcomplex een open karakter heeft. Niet alleen van buitenaf, maar ook vanaf het terrein is het esthetisch aspect belangrijk. Te massaal karakter dient te worden vermeden. Voor de „leefbaarheid” van het complex — het zich snel thuisvoelen van nieuw personeel en het zich gemakkelijk kunnen oriënteren — is het van belang dat het complex overzichtelijk wordt opgebouwd.

Niet minder dan 50 ontwerpen zijn ter tafel gekomen, waarvan nauwkeurig is onderzocht in hoeverre ze aan de gestelde eisen voldeden. Hieruit is een vijftal geselecteerd. Om nu uit deze vijf plannen het beste te kiezen, is de volgende werkwijze toegepast. Er is een beoordelingsstaat opgesteld waarin gedetailleerd de te beschouwen gezichtspunten voorkwamen. De betrokken deskundigen drukten hun oordeel voor elk gezichtspunt afzonderlijk uit met de cijfers 1 tot en met 5:

1: Het plan voldoet uit het beschouwde oogpunt slecht.

2: —

3: Het plan voldoet redelijk.

4: —

5: Het plan voldoet beter dan de andere plannen. Het toegekende cijfer werd vermenigvuldigd met een gewichtsfactor die het belang van het beschouwde gezichtspunt aangeeft in verhouding tot de andere. Vervolgens werden voor elk plan al deze gewogen beoordelingscijfers opgeteld.

Tabel I geeft de beoordelingsstaat van het goedgekeurde plan, dat een totaal puntenaantal van 427 verwierf. De puntenaantallen van de andere vier plannen waren: 357, 342, 320 en 294. Fig. 2 is een maquette van het geaccepteerde ontwerp.

Het ontwerpen van de laboratoriumgebouwen

Nu kon dus worden overgegaan tot het ontwerpen der laboratoriumgebouwen. Het spreekt vanzelf dat hieraan verschillende studies voorafgingen, waarbij bezoeken werden gebracht aan laboratoria van vergelijkbare omvang en besprekingen werden gevoerd met ontwerpers en bouwers, en met wetenschappelijke onderzoekers, werkzaam in moderne onderzoekcentra. We zullen ons in het volgende voornamelijk beperken tot de wijze waarop het ontwerp voor de grote laboratoria tot stand kwam.

Het is onmogelijk om over lange termijn te voorspellen op welke gebieden een laboratorium voor fundamenteel onderzoek activiteiten zal gaan ontwikkelen. Het is zelfs moeilijk om bij het begin van de bouw rekening te houden met het op dat moment bestaande programma; immers de bouwwerkzaamheden van een laboratorium van enige omvang nemen ongeveer drie jaar in beslag, en de ondervinding heeft geleerd dat in drie jaar heel wat wijzigingen in een wetenschappelijk programma op kunnen treden. Ons richtsnoer werd derhalve: *bouw een „universeel” en „flexibel” laboratorium*, in staat zich aan elk wetenschappelijk programma aan te passen.

Onder een universeel laboratorium verstaan we een laboratorium waarvan elke experimenteerruimte geschikt is voor het verrichten van zowel chemisch,

Tabel I. De beoordelingsstaat van het goedgekeurde plan. De waardering van het plan uit de hierin gespecificeerde oogpunten is uitgedrukt met de cijfers één tot en met vijf (in de eerste kolom); met de gewichtsfactor in de tweede kolom is het belang van het gezichtspunt in verhouding tot de andere aangegeven. De som van de produkten hiervan (derde kolom) geeft een maatstaf ter vergelijking met andere plannen. Dit aangenomen ontwerp heeft volgens deze methode een puntenaantal van 427 verworven, tegen puntenaantallen van 357, 342, 320 en 294 van vier andere ontwerpen.

	Beoor- deling	Ge- wichts- factor	Pro- dukt
1. Contacten			
<i>Van laboratorium tot:</i>			
a) andere sectoren	2	4	8
b) eigen sectorwerkplaats	5	5	25
c) andere sectorwerkplaatsen	3	1	3
d) parkeerplaatsen	4	2	8
e) directiehoofdgebouw met centrale bibliotheek	5	3	15
f) kantine + collegezaal	4	1	4
<i>Van sectorwerkplaats tot:</i>			
g) andere sectorwerkplaatsen	2	2	4
h) overdekte verbindingen mogelijk	2	3	6
i) verbinding gebouw WA — sector I	4	4	16
2. Storingsvermijding			
<i>Afstand van hoofdverkeersweg tot:</i>			
a) laboratoria (lawaaï + trillingen)	4	4	16
b) sectorwerkplaatsen (trillingen)	4	4	16
c) directiehoofdgebouw (lawaaï)	5	3	15
<i>Afstand van verbindingsweg tot:</i>			
d) laboratoria (lawaaï + trillingen)	4	4	16
e) sectorwerkplaatsen (trillingen)	4	4	16
f) directiehoofdgebouw (lawaaï)	4	3	12
g) hinder samenhangend met heersende windrichting	5	1	5
h) hinder van gebouwen onderling (lawaaï, trillingen)	5	1	5
i) oriëntatie van experimenteerkamers	3	2	6
3. Stedebouwkundige aspecten			
a) gezicht vanaf een nabijgelegen wijk (Bennekel)	5	1	5
b) gezicht vanaf verbindingsweg en terreintoegangen	5	5	25
c) gezicht vanaf hoofdverkeersweg	4	4	16
d) op het terrein	5	6	30
e) duidelijk structuurplan	5	3	15
f) uitzicht uit gebouwen	5	6	30
4. Economie			
a) terreingebruik	2	1	2
b) leidingen in terrein	4	2	8
5. Stedebouwkundige flexibiliteit			
a) veranderen van structuurplan mogelijk	5	6	30
b) veranderen van laboratoriumgebouw mogelijk	5	8	40
6. Bewaking			
a) plaats van directiehoofdgebouw in verband met toegang voor bezoekers	4	3	12
b) aantal noodzakelijke terreintoegangen	3	1	3
7. Overzichtelijkheid van het complex			
	5	3	15
Som			427

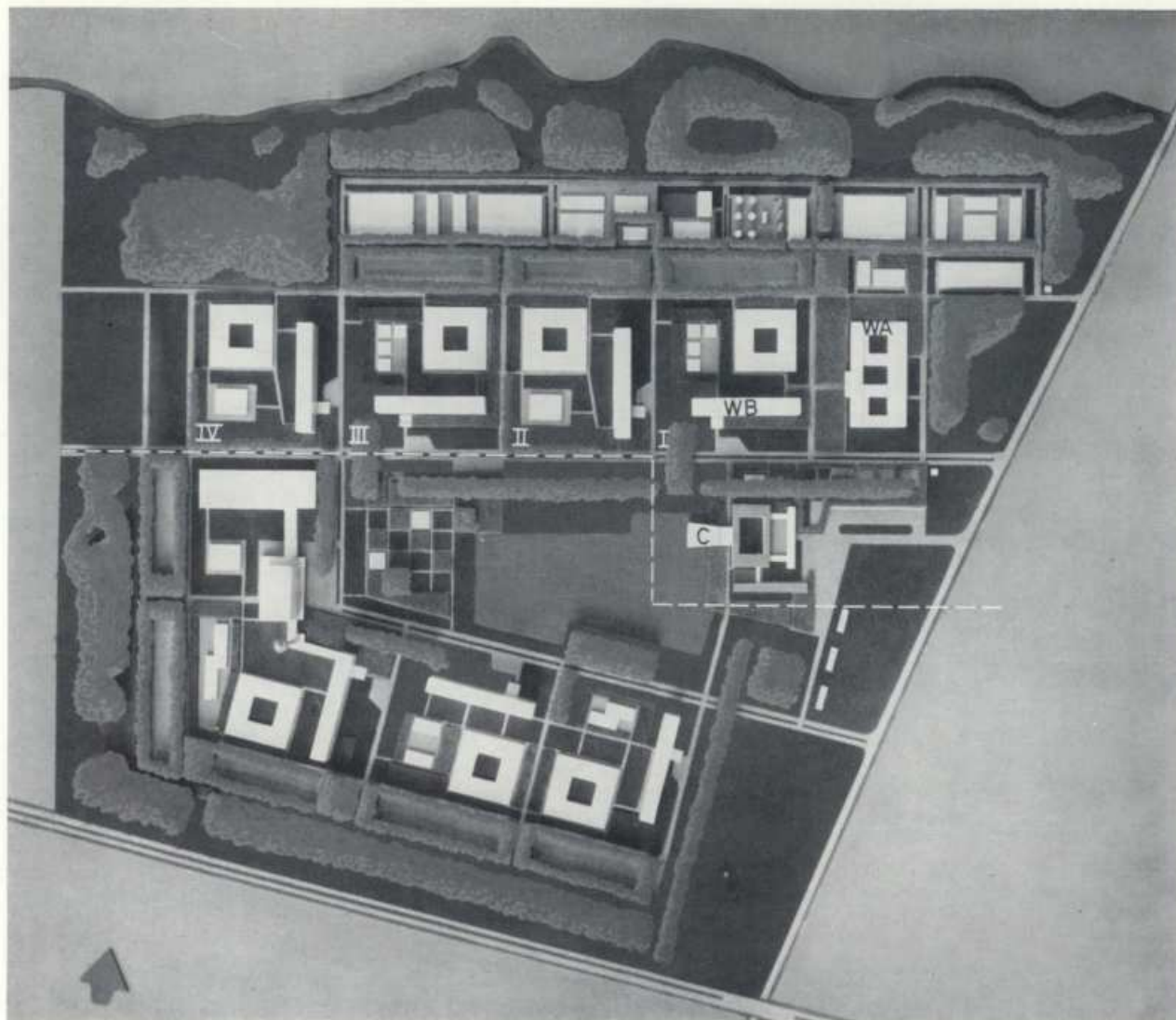


Fig. 2. Maquette van het nieuwe laboratoriumcomplex. Boven de stippellijn de vier sectoren I, II, III, en IV waarin omstreeks 1970 het te verwachten aantal van 3000 man personeel zal zijn ondergebracht. Onder de stippellijn de gebouwen voor een eventuele uitbreiding in de verdere toekomst. Het gebouw WA is in 1960 gereedgekomen. Sector I met het gebouw WB is thans in gebruik genomen. C is het geplande directiehoofdgebouw.

fysisch als elektronisch werk — de drie soorten werk die voor ons laboratorium het belangrijkste zijn. Voor de flexibiliteit is gestreefd naar een verdeling in kamers met gestandaardiseerde afmetingen, waarbij de mogelijkheid om deze te vergroten of te verkleinen aanwezig is. Hierdoor zijn hergroeperingen, die nodig kunnen worden als gevolg van een programmaverandering, gemakkelijk te realiseren.

In verband hiermee is de beste bouwwijze die waarbij steeds een bepaalde bouweenheid wordt herhaald. De door ons vastgestelde bouweenheid omvat een standaardexperimenteerkamer en een standaardstudeerkamer, gescheiden door een stuk gang. De herhalingsafstand, de moduul, is vastgesteld op 3,85 m, met een diepte van 7,5 m voor de standaardexperimenteerkamers en 5 m voor de

standaardstudeerkamers (vloeroppervlakte resp. 28 en 19 m²). Men zie het schema in fig. 3. De hoogte van de kamers is vastgesteld op 3,5 m.

Voor het kiezen van de moduul zijn we o.a. uitgegaan van de afmetingen van het te gebruiken meubi-

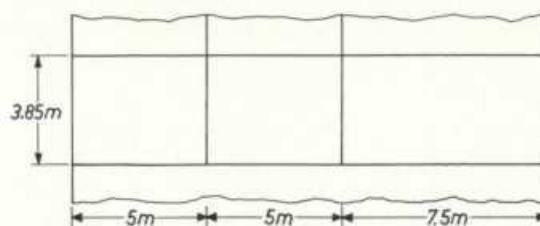


Fig. 3. Plattegrond van de bouweenheid van de grote laboratoriumgebouwen, gevormd door een standaardexperimenteerkamer (rechts), en een standaardstudeerkamer, gescheiden door een stuk gang. De herhalingsafstand ofwel „moduul” is 3,85 m.

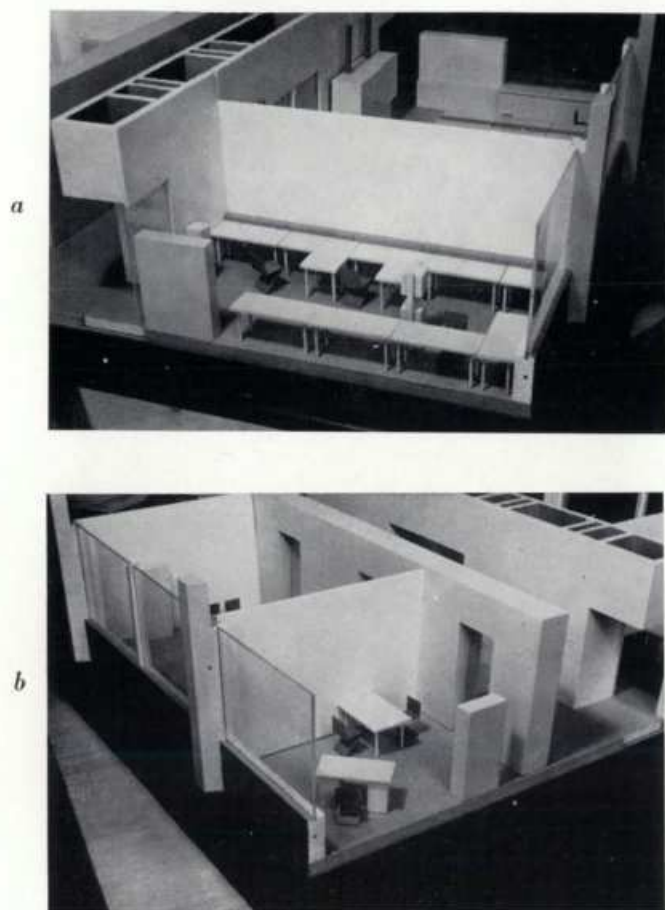


Fig. 4. Maquette met behulp waarvan de moduul is vastgesteld aan de hand van o.m. het te gebruiken meubilair. a) gefotografeerd van de studeerkamerzijde; b) van de experimenteer-kamerzijde.

lair en de gewenste vrije ruimte daartussen (zie fig. 4). De meubelen zijn genormaliseerd en speciaal voor het nieuwe laboratorium ontworpen, na een uitvoerig onderzoek van het gebruik van het meubilair in het bestaande laboratorium.

Een consequentie van de beschreven modulaire indeling bleek te zijn dat de leeszaal, de collegezaal en de kantine met bijbehorende keuken moeilijk in het laboratoriumgebouw konden worden ondergebracht. De architecten hebben hiervoor een zeer aantrekkelijke oplossing gevonden door deze onderdelen in een aangebouwd laag gedeelte onder te brengen, zie fig. 5. In dit stadium is ook besloten dat het laboratorium acht verdiepingen hoog zou worden.

Voordat met de bouw werd begonnen, is het ontwerp beproefd in een gebouwtje dat als het ware een „moot” is uit het ontworpen gebouw (fig. 6). In dit proefgebouwtje, dat in een van de tuinen van het

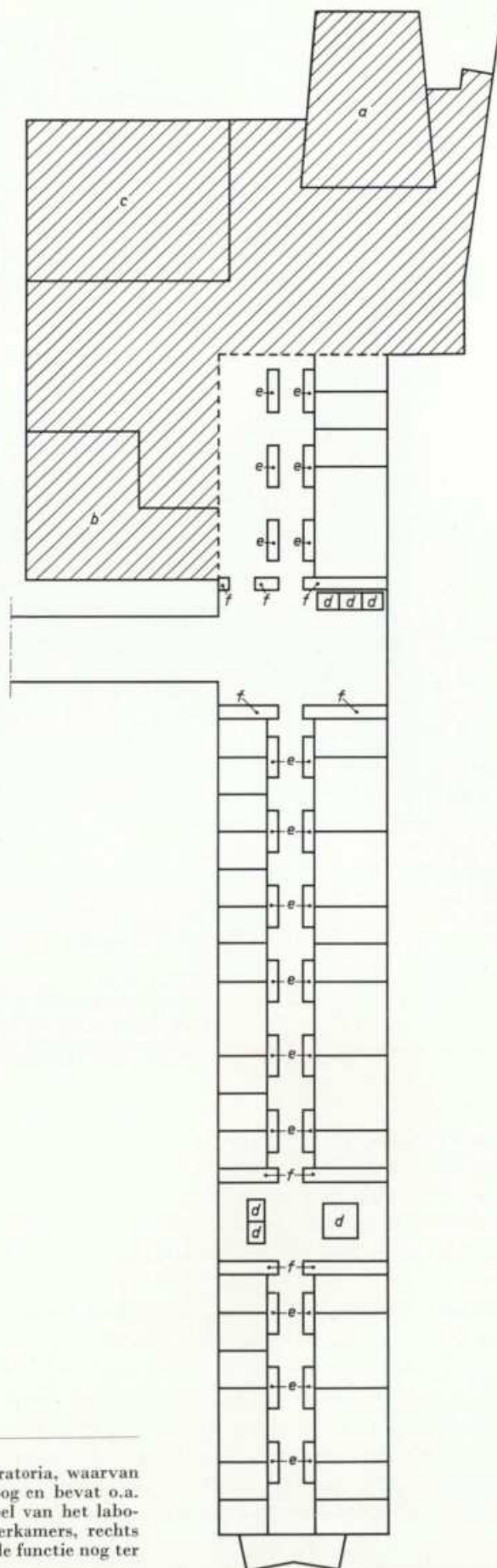


Fig. 5. Plattegrond van de benedenverdieping van de grote laboratoria, waarvan thans een gereed is. Het gearceerde gedeelte is één verdieping hoog en bevat o.a. een collegezaal a, een leeszaal b en een kantine c. Het overige deel van het laboratorium is acht verdiepingen hoog. Links bevinden zich de studeerkamers, rechts de experimenteerkamers. d liftkokers, e en f schachten waarvan de functie nog ter sprake komt.



Fig. 6. Het proefgebouwtje in een van de tuinen van het oude Laboratorium.

oude Laboratorium stond, is o.m. de geschiktheid van het meubilair nagegaan, en op grond van de ervaringen hier is ook de moduul definitief bepaald.

Beproeving op veel groter schaal geschiedde in het „gebouw WA” op het terrein in Waalre (waarvan we in de beoordelingsstaat reeds melding maakten en dat ook op de plattegrond in fig. 2 is aangegeven). Dit is een laag laboratorium, compleet met

werkplaatsen en voorzieningen. Wanneer het voorlopige einddoel, waarbij 3000 medewerkers in het nieuwe complex werken, bereikt zal zijn, zal dit proeflaboratorium als technologisch laboratorium in gebruik blijven. In fig. 7 zien we rechts op de voorgrond het gebouw WA en links het in staat van voltooiing verkerende gebouw WB, het grote laboratorium van de thans in gebruik genomen sector.



Fig. 7. Luchtfoto van het terrein in Waalre met rechts op de voorgrond het proeflaboratorium WA en links WB, het eerst gebouwde hoge laboratorium.

Het voedingssysteem voor elektriciteit, water en gasen

Bij het ontwerpen van de laboratoria is veel aandacht besteed aan het voedingssysteem. Hiervoor zijn *verticale schachten* (de schachten *e* in fig. 5) geprojecteerd, waardoor elektrische leidingen en aan- en afvoerleidingen voor water, lichtgas, stikstof, zuurstof enz. van de kelder rechtstreeks naar de kamers kunnen worden gevoerd. Met behulp van 12 schachten worden alle experimenteerkamers voorzien. In fig. 6 zal opvallen dat óók aan de studeerkamerzijde 12 schachten zijn aangebracht. De reden hiervan is het voorlopig nog heersende grote ruimtetekort: hierom is het nodig geoordeeld een groot gedeelte van de studeerkamers gedurende een overgangstijd als experimenteerkamers te gebruiken. Wanneer de studeerkamers hun oorspronkelijke bestemming terugkrijgen, zullen deze laatste schachten tot kasten verbouwd kunnen worden.

Dit verticale voedingssysteem heeft het voordeel boven een horizontale dat de leidingen voor een bepaalde kamer pas aangelegd behoeven te worden op het moment dat vaststaat dat ze nodig zijn — bij een horizontaal systeem is dit niet mogelijk zonder last te berokkenen aan de naburige kamers. Er

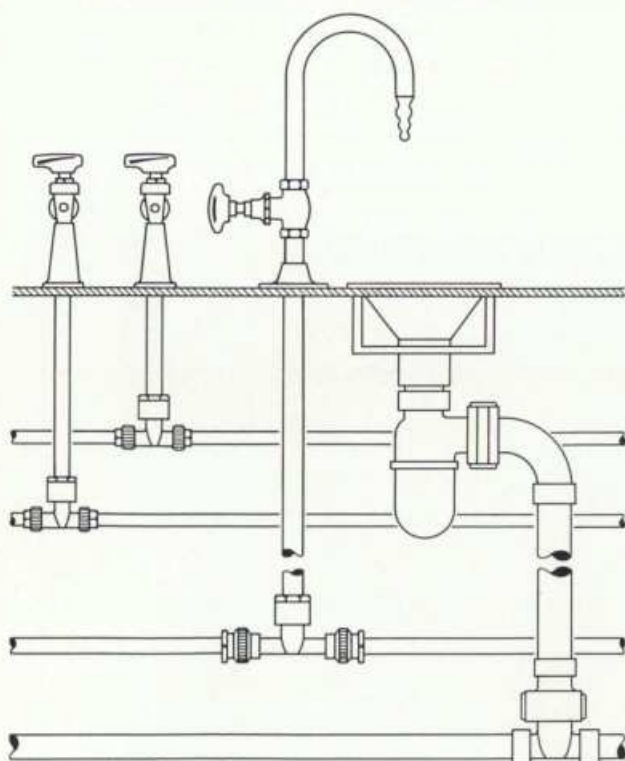


Fig. 8. De voor het laboratoriumwerk nodige stoffen als water, lichtgas, stikstof, zuurstof e.d. worden aangevoerd via 24 verticale schachten, die ieder door alle acht verdiepingen van het laboratorium lopen. Het leidingennet in elke kamer is ter wille van de stofvrijheid ondergebracht achter een op een vensterbank gelijkend beschot (zie fig. 12). Boven op dit 20 cm brede beschot kunnen de nodige aftapkranen en ook de waterafvoer op iedere gewenste plaats worden gemonteerd, op de wijze als in de figuur schematisch is aangegeven.

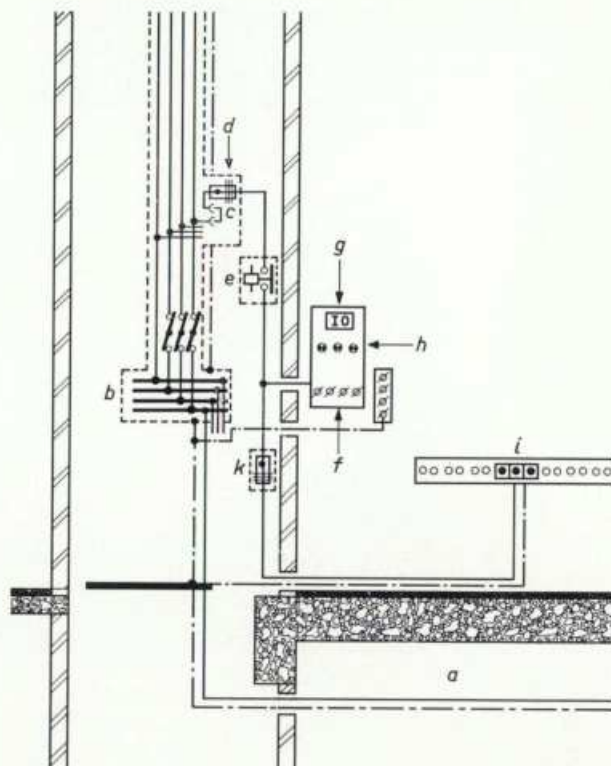


Fig. 9. Verticale doorsnede van een schacht op de benedenverdieping met aangrenzend gedeelte van een experimenteerkamer. De elektrische voeding wordt verzorgd door een driefazensysteem in sterschakeling met spanningen van 220 en 380 V. De hoofdleiding, die door de kelder *a* loopt, bezit voor elke schacht een aftakking via een vierpolige aftakbank *b* naar een railkokersysteem voor 200 A. De railkokers in de schacht worden op hun beurt afgetakt via een vierpolige mechanische aftakbank *c* met ingebouwde smeltveiligheid *d* van 60 A en een magnetische schakelaar *e*. Elke kamer heeft een schakelbord met klemmen *f* voor de drie fazen en de nulleiding, benevens drukknoppen *g* voor het bedienen van de magnetische schakelaar en een drietal neonlampjes *h*, die aangeven welke klemmen onder spanning staan. Iedere kamer is bovendien voorzien van door smeltveiligheden *k* van 25 A beschermde aansluitkastjes *i*, die zes stopcontacten voor 220 V en drie magnetische drukknopveiligheden van 10 A bevatten. De leidingen hiervoor zijn ondergebracht achter het beschot langs de wand. Iedere kamer bezit tevens een aansluiting op een aardleiding (streep-stiplijn). Indien nodig voor meetdoeleinden, kan er een speciale aardleiding aangelegd worden.

is een vergelijking gemaakt tussen beide systemen wat betreft de aanlegkosten. Voor een gebouw van 8 verdiepingen, als het onze, en met 12 schachten, betekent het verticale systeem een besparing van ruim 50%, bij een aanleg van 12 schachten extra aan de studeerkamerzijde is de besparing nog ongeveer 25%.

De nodige leidingen die van de schachten de kamers binnengevoerd worden, zijn met het oog op stofbestrijding opgeborgen achter een beschot, dat als een soort vensterbank langs de wand loopt (zie fig. 12). Met behulp van speciale koppelingen kunnen de leidingen op iedere gewenste plaats afgetakt worden (fig. 8). Achter het beschot worden ook de elektrische leidingen ondergebracht. Ze worden voor elke kamer afgetakt van een schakelbord in de kamer, dat vanuit de kelder op driefazenspanning

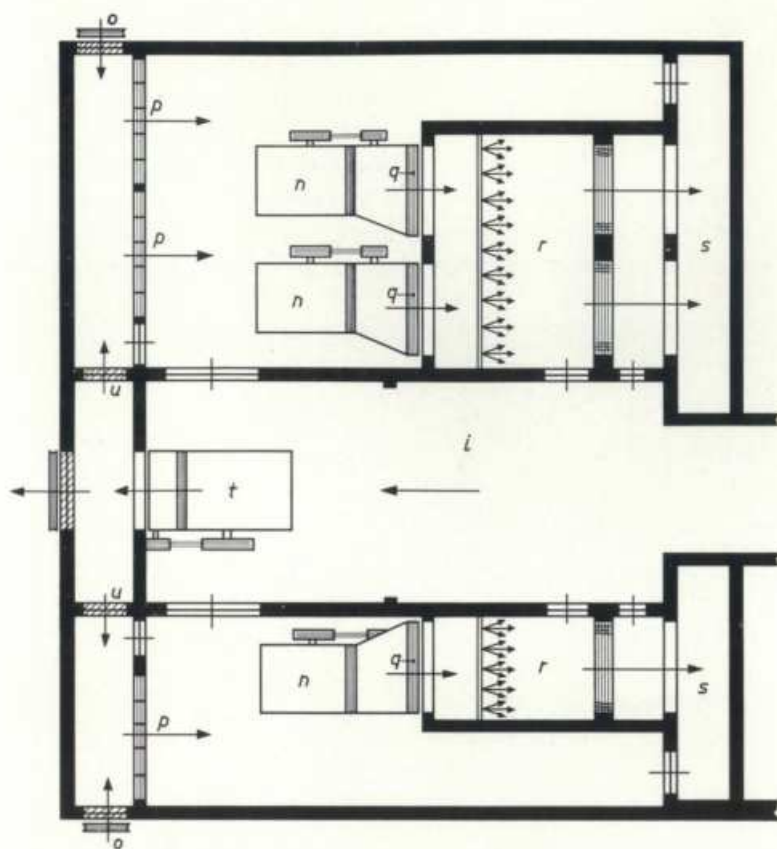


Fig. 10. Plattegrond van de ventilatiekamers op het dak. De ventilatoren *n* zuigen buitenlucht aan door de roosters *o* en stoffilters *p*, en blazen de lucht via apparatuur voor verwarming (*q*), voor koeling (nog niet aangebracht), en voor bevochtiging (*r*), naar de openingen *s* van verticale schachten waarlangs de lucht door het gehele gebouw gecirculeerd wordt. Zie hiervoor fig. 11. De „retourlucht” komt in het reservoir *i* en wordt door de ventilator *t* naar buiten afgevoerd. Door de kleppen *u* op een bepaalde stand te openen, is het mogelijk een mengsel van retourlucht en verse buitenlucht in een verhouding van 2 op 1 door het gebouw te laten circuleren. Dit bespaart 's winters warmte. Volledige luchtverversing wordt verkregen door de kleppen *u* te sluiten.

(380/220 V) wordt aangesloten (voor nadere details, zie het onderschrift van fig. 9). Indien men gelijkstroom nodig heeft, kan hierin voorzien worden, hetzij plaatselijk, door middel van een gelijkrichter, hetzij, indien een groot vermogen nodig is, door een in de kelder te plaatsen gelijkstroombron.

De luchtverzorging

De lucht in het laboratorium dient regelmatig ververst te worden, verwarmd of zonodig gekoeld, en op de juiste graad van vochtigheid gehouden. Vele van de hiervoor nodige installaties zijn ondergebracht boven de achtste verdieping, op het dak, zie fig. 10. In het midden bevindt zich een „retourlucht-reservoir” *i*, dat zowel in verbinding staat met de buitenlucht als met alle kamers van het laboratorium. We gaan thans na, aan de hand van fig. 11, wat de functie van dit reservoir is.

In fig. 11 zijn een aantal experimenteer- en studeerkamers getekend, waarvan *b* en *d* speciale voorzieningen hebben voor het afzuigen van zuurkasten, ovenruimten e.d. We bespreken eerst het circulatiesysteem van de kamers zonder zuurkasten. Van de experimenteerkamers *e* en *f* gaat de lucht via roosters *g* en de schachten *h* naar het genoemde reservoir *i*; de lucht uit de studeerkamers *a* en *c* passeert op weg naar dit reservoir nog de gangen *k*. Aldus verzameld, kan de lucht met buitenlucht ververst

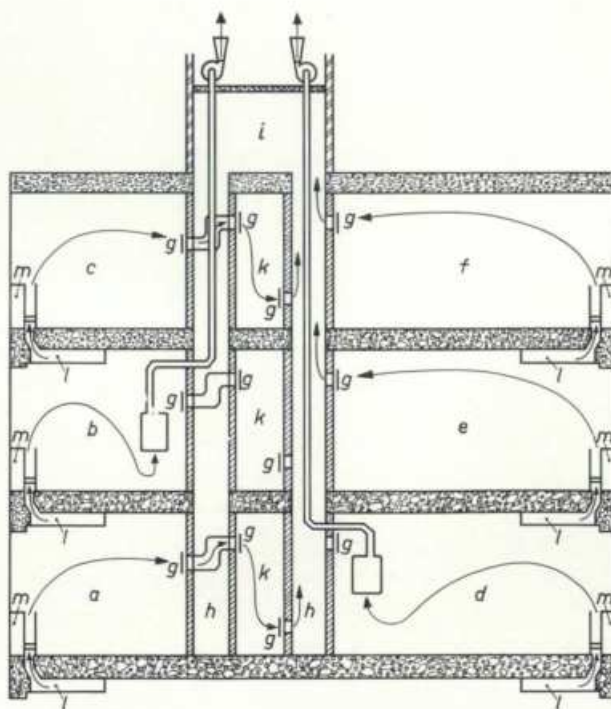


Fig. 11. Schema van de luchtcirculatie in een verticale doorsnede van drie verdiepingen van het gebouw. De inblaaskasten *m* staan via horizontale kanalen *l* en verticale luchtschachten (*f* in fig. 5) in verbinding met de ventilatieruimte op het dak. In de studeerkamer *b* en in de experimenteerkamer *d* zijn zuurkasten aanwezig met afzonderlijke afzuigventilatoren. Voor de verklaring van de overige letters, zie de tekst.

worden, en wederom worden gebruikt voor circulatie. In fig. 10 zien we de ventilator *t* die lucht naar buiten drijft, en de ventilatoren *n* die verse lucht naar binnen zuigen. Als de kleppen *u* geopend zijn, zuigen deze laatste ventilatoren ook de reeds gebruikte lucht uit het reservoir aan en voeren dan een mengsel van verse en gebruikte lucht — in een verhouding van 1 op 2 — naar de openingen *s* van ver-

experimenteerkamers zonder zuurkasten e.d. Per uur stroomt door de studeerkamers zes maal en door de experimenteerkamers tien maal het kamervolume aan lucht.

Indien een zuurkast in een kamer aanwezig is, zoals in de kamers *b* en *d* in fig. 11, voert een speciale afzuigleiding, met eigen ventilator, de lucht uit die kamer direct naar buiten (zie ook fig. 12). Om te voor-



Fig. 12. Kijkje in een experimenteerkamer met zuurkast. Rechts van de zuurkast het schakelbord met de magnetische schakelaar en aansluitingen voor 60 A, links ervan de aansluitingen voor 10 A. Rechts boven ventilatierooster.

ticale schachten (via apparatuur voor verwarming (*q*), bevochtiging (*r*) en eventueel koeling). Deze speciale luchtschachten lopen van de bovenste verdieping tot aan de kelder en staan door een horizontaal kanalenstelsel in verbinding met alle kamers. De uitmondingen van de desbetreffende kanalen zien we weer in fig. 11 (*l*), ze voeden de inblaaskasten *m* aan de raanzijde van de kamers — de snelheid van de ingeblazen lucht is beperkt tot 1,5 m/s ter voorkoming van geluidshinder. Het weer doen circuleren van reeds gebruikte lucht uit het reservoir heeft 's winters het voordeel van warmtebesparing; 's zomers wordt volledige luchtverversing toegepast. Hiertoe worden de kleppen *u* in fig. 10 gesloten.

Tot zover de luchtverversing in de studeer- en

komen dat de zuurkast „terugslaat” (door onderdruk in de kamer) dient het rooster *g* gesloten te zijn wanneer de centrale ventilatoren in werking treden. Dit heeft weer als consequentie dat de zuurkast niet mag worden afgezet zolang de centrale ventilatoren functioneren, anders ontstaat er overdruk in de kamers. Hierdoor bestaat gevaar dat „vuile” lucht uit die kamer (via de deurspleten en bij het openen van de deur) zich over het gehele gebouw verspreidt. Er zijn twee oplossingen hiervoor denkbaar: a) De roosters worden permanent gesloten en de speciale afzuigingen worden altijd gelijktijdig met de centrale ventilatie aan- en afgezet. b) De roosters worden automatisch gesloten bij het aanzetten van de zuurkast en geopend bij het stopzetten ervan. Dit laatste

systeem, waarbij de zuurkast naar behoefte gebruikt kan worden, en dat dus veel goedkoper is dan het eerste, zal in dit laboratorium toegepast worden.

De afzuigcapaciteit is in de meeste kamers niet onbeperkt, zij wordt bepaald door het maximale aantal van zes afzuigleidingen dat in de schacht een plaats kan vinden. Deze beperking geldt niet voor kamers op de bovenste etage, waarbij de afzuigleidingen direct naar buiten kunnen worden gevoerd. Deze kamers zullen veelal als chemische experimenteerkamers gebruikt worden. In alle chemische kamers, ook die op andere etages, kan de lucht door speciale maatregelen sneller ververst worden dan bij de gewone experimenteerkamers gebruikelijk is.

Wat de verwarming aangaat, dient er rekening mee gehouden te worden dat in vele experimenteerkamers eigen warmtebronnen aanwezig zijn, in de vorm van ovens, branders, zendinstallaties van groot vermogen e.d. Verlangd wordt derhalve dat de temperatuur van de kamers door de bewoners zelf kan worden geregeld. Zoals gezegd, passeert de voor de luchtverversing aangevoerde buitenlucht de verwarmingsinstallatie *q* in fig. 10. De verwarming wordt in deze installatie zodanig ingesteld dat de temperatuur van de lucht die de kamers ingeblazen wordt maximaal 16 °C bedraagt. Verdere verwarming geschiedt op elke kamer afzonderlijk door middel van paren verwarmingsbuizen die horizontaal langs de raamzijde van alle kamers lopen, zie fig. 13.

Langs één van het paar buizen *a* strijkt de inblaasluft; de andere buis *b* verwarmt de kamer door een convectiestroom teweeg te brengen. Dit geeft een gelijkmatige verwarming van de kamers en een goede luchtcirculatie. De aldus bereikbare kamertemperatuur is 22 °C.

In de zomer vindt zonodig koeling plaats — door een installatie in de ventilatieruimte op het dak, of in de kamers afzonderlijk door speciale, boven de plafonds aangebrachte koelinstallaties. Bij de bevochtiging van de lucht (in *r*, zie fig. 10) wordt gestreefd naar een relatieve vochtigheid van 55% bij 20 °C kamertemperatuur.

Na werktijd wordt het ventilatiesysteem afgezet; de kamers worden dan alleen verwarmd door de centrale verwarmingsbuizen.

Maatregelen tegen lawaai, elektrische storingen en stof

Aan de geluidichtheid in de experimenteerkamers en vooral ook in de studeer- en conferentiekamers worden hoge eisen gesteld. We hebben er reeds op gewezen dat bij het ontwerpen van de laboratoria hiermede rekening is gehouden. Zo is de ligging van de laboratoria ten dele bepaald door de afstand

tot de naburige wegen. Om de geluidshinder van de werkplaatsen te ontgaan, zijn deze in afzonderlijke gebouwen ondergebracht, verbonden met de bijbehorende laboratoria door overdekte verbindingsgangen. Bij het ontwerpen van het bovenbeschreven ventilatiesysteem, en ook wat betreft de gevolgde bouwmethodes en gebruikte materialen, is gelet op het verkrijgen van een goede geluidichtheid. Om slechts een enkel voorbeeld te noemen: de plafonds bestaan uit geperforeerde en geprofileerde aluminiumplaten bedekt met een geluidabsorberend materiaal; de scheidingswanden van de kamers zijn halfsteensmuren die aan beide zijden gestukadoord zijn.

Een belangrijke bron van elektrische storingen zijn de transformatoren voor de voeding van de laboratoria. Deze zijn voor elke sector ondergebracht in de werkplaats, dus buiten de laboratoriumgebouwen. Voor storingvrije metingen kunnen Faraday-kooien worden toegepast. Indien bijzonder hoge eisen gesteld worden aan de storingvrijheid, kunnen deze kooien in de 5 meter hoge kelder ge-

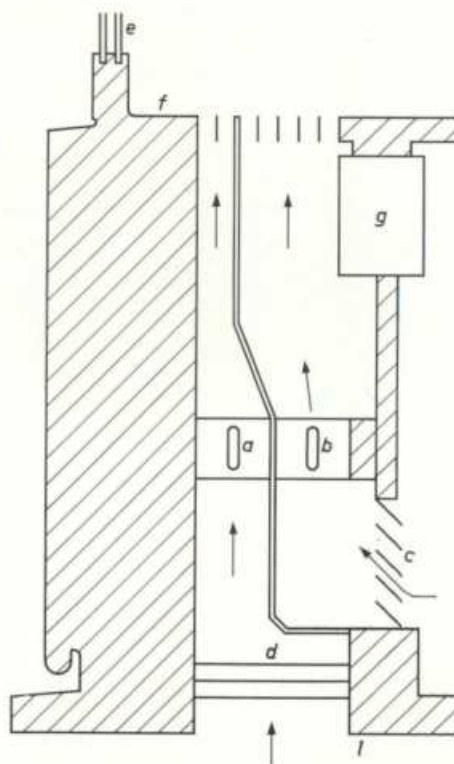


Fig. 13. Dwaarsdoorsnede van de in elke kamer aangebrachte inblaas- en convectorkast. De in de kamer naar binnen geblazen lucht stroomt langs de verwarmingsbuis *a*; via de panelen *c* strijkt tevens lucht uit de kamer langs de verwarmingsbuis *b*. Zo ontstaat een goede luchtcirculatie en een gelijkmatige verwarming in de kamer. De verwarming kan door de bewoner geregeld worden door een kraan die op beide buizen is aangesloten. De kleppen *d* dienen om de hoeveelheid ingeblazen lucht te regelen; bij aanwezigheid van zuurkasten is meer luchttoevoer nodig. *e* dubbele vensterruit, *f* vensterbank, *g* montagekoker o.m. voor telefoonaansluitingen.

plaatst worden, waarin van nature het storingsniveau laag is. De filters die men gebruikt voor de storingsbestrijding in de voedingsleidingen kunnen in dat geval bovendien geaard worden door korte aardverbindingen met kleine aardingsweerstand.

Een van de maatregelen bij de stofbestrijding waaraan wij veel aandacht besteed hebben, is het zorgvuldig filteren van de ventilatielucht (de filters *p* in fig. 10). Verder zijn omwille van een minimale stofproductie en stofophoping metalen plafonds gebruikt. Om dezelfde reden zijn beschotten gebruikt voor het onderbrengen van de diverse leidingen. Ook de door de schoonmaakdienst te gebruiken was- en poetsmiddelen zijn met het oog op de stofvrijheid speciaal uitgezocht.

De beplanting van het terrein

Tot slot nog een enkel woord over het nieuwe landschap dat gevormd zal moeten worden ten einde het laboratoriumcomplex op verantwoorde wijze een plaats te geven in de toekomstige agglomeratie van Eindhoven en zijn randsteden. Op de gronden bij het nabije riviertje de Dommel groeit van nature een bosgezelschap van verscheidene soorten popu-

lieren en wilgen. De landschapsarchitect stelt zich voor, deze gronden verder te beplanten met andere gewassen die hier inheems zijn, zoals de vlier, de hazelaar, de els, de vogelkers, de zomereik, de veldiep en de esdoorn. Van buiten naar het centrum toe zal worden overgegaan naar groeperingen met planten van meer gecultiveerd karakter.

Alles wat tot nu toe tot stand gekomen is van het laboratoriumcomplex in Waalre, is het resultaat van een nauwe samenwerking tussen het Philips' Architecten- en Ingenieursbureau aan de ene kant en een aantal medewerkers van het Natuurkundig Laboratorium aan de andere kant.

In het besef dat het hier ging om een groot en zeer kostbaar project hebben zij gezamenlijk langdurig de problemen bestudeerd die zich bij de voorbereiding en de voltooiing van de eerste fase van het werk voordeden. De verkregen inzichten zijn naar ons beste kunnen in het gebouw verwerkt. Wij hopen dat de praktijk de juistheid van deze inzichten zal bevestigen en dat het nieuwe Laboratorium een goed instrument zal worden voor de speurwerkactiviteiten van het Philipsconcern.

Samenvatting. In vogelvlucht wordt een beeld gegeven van de vraagstukken die zich voordeden bij het ontwerpen van het nieuwe gebouwencomplex voor Philips' Natuurkundig Laboratorium te Waalre, dat in 1970 ongeveer 3000 man personeel zal moeten herbergen, en waarvan thans een van de geplande vier grote laboratoria met bijbehorende gebouwen in gebruik is genomen. Op verantwoorde wijze moesten zeer uiteenlopende eisen met elkaar in overeenstemming worden ge-

bracht: verlangens van de zijde van het Laboratorium betreffende goede contacten tussen de medewerkers, storingvrij werken enz., en allerlei eisen van bouwkundige en architectonische aard. Nader is ingegaan op bijzondere aspecten van het gekozen ontwerp, zoals het verticale voedingssysteem voor elektriciteit, gassen en water, het systeem van de luchtverzorging en verschillende maatregelen ter bestrijding van lawaai, elektrische storingen en stof.

SAMENVATTINGEN VAN DE DEMONSTRATIES EN KORTE VOORDRACHTEN *)

De korte voordrachten, door leden van het Philips' Natuurkundig Laboratorium gehouden op het Symposium te Eindhoven op 26/27 september 1963, waren verdeeld in vier groepen: A in hoofdzaak fundamenteel, B toestellen en materialen, C systemen en metingen, D biochemie en perceptie.

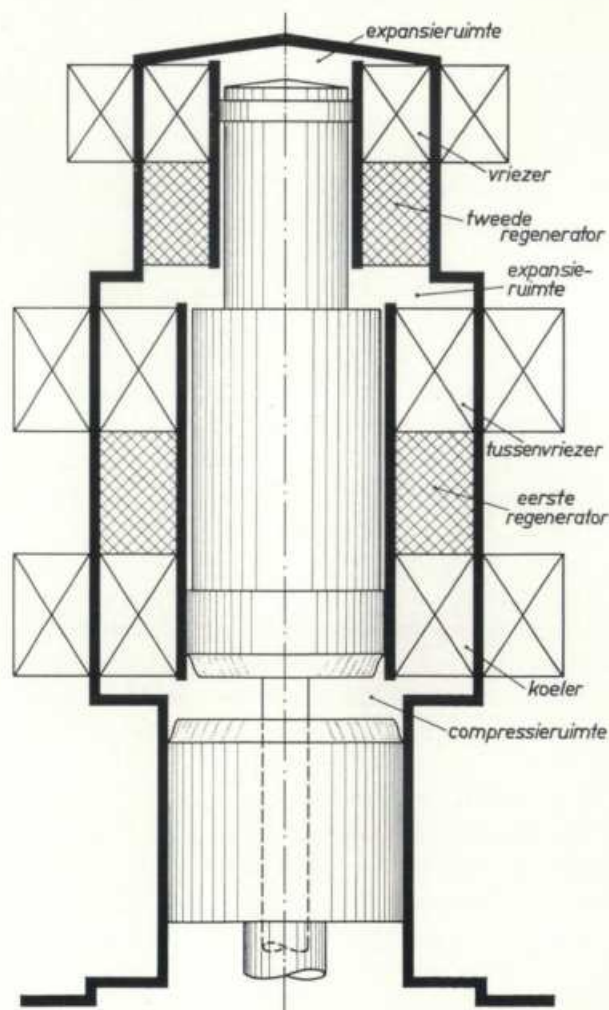
DEMONSTRATIES

1. Een koudgaskoelmachine voor het temperatuurgebied van vloeibare waterstof, door G. Prast.

Na een kort historisch overzicht van de ontwikkeling van de thermodynamische cyclus van Stirling wordt de toepassing van deze cyclus in de Philips koudgaskoelmachines beschreven. Deze machines, die door Philips oorspronkelijk ontwikkeld zijn voor het temperatuurgebied van vloeibare lucht, hebben algemeen ingang gevonden in de koudetechniek, vooral door hun compactheid en eenvoudige bediening. Verdere voordelen van deze machines zijn: In het systeem hopen zich geen verontreinigingen op, daar de cyclus, die bestaat uit afwisselende compressie en expansie van een vaste hoeveelheid gas, zich in een gesloten ruimte afspeelt; het systeem werkt zonder kleppen; in vergelijking met andere processen die in dit temperatuurgebied koude kunnen leveren, is het rendement zeer bevredigend.

Hierna wordt besproken hoe het normale Philips-Stirling-systeem zich gedraagt in de buurt van 20 °K, en er wordt een wijziging van de cyclus beschreven waardoor al de genoemde voordelen ook in dat temperatuurgebied worden verkregen. De wijziging bestaat hierin dat aan de elementen van de normale machine een tweede expansieruimte met bijbehorende warmtewisselaars wordt toegevoegd (zie figuur). In ieder van de twee expansieruimten wordt nu een gedeelte van het gas volledig geëxpandeerd, waarbij de eerste expansieruimte als voorcoeler voor de tweede expansietrap fungeert. Een prototype van een dergelijke machine met drie variabele ruimten heeft een vrij hoog rendement bij 20 °K en bereikt als laagste temperatuur 12 °K. Ter demonstratie van de machine wordt een supergeleidende schijf tot onder zijn kritische temperatuur afgekoeld, waarbij de supergeleiding wordt aangetoond door het feit dat een magneet boven de schijf blijft zweven.

Met deze constructie hebben we thans een universeel bruikbare machine voor het temperatuurgebied van vloeibare waterstof verkregen. Door toevoeging van een gesloten Joule-Thomson-systeem kan het temperatuurgebied gemakkelijk nog tot vloeibaar helium worden uitgebreid. Met speciale uitvoeringen kan men andere interessante mogelijkheden realiseren, b.v. universeel bruikbare kryostatens voor temperaturen boven 4 °K en apparaten voor het vloeibaar maken en hercondenseren van neon, waterstof en helium. Bovendien is de machine bijzonder geschikt voor kryogeen pompen.



*) De onderwerpen van een aantal van deze voordrachten zullen binnenkort worden behandeld in artikelen die in dit tijdschrift zullen worden gepubliceerd.

2. Het „Plumbicon”, door E. F. de Haan en S. L. Tan.

Het „Plumbicon” is een televisie-opneembuis die volgens dezelfde principes werkt als het vidicon maar die gebruik maakt van de fotogeleidende eigenschappen van PbO. De belangrijkste voordelen van het „Plumbicon” zijn: een geringe donkerstroom (waar door het probleem van de ongelijkmatigheden in het zwartniveau wordt opgelost); een grote responsiesnelheid, die onafhankelijk is van de lichtintensiteit; en een grote gevoeligheid. Dit betekent dat dit type opneembuis, dat overigens dezelfde voordelen van eenvoudige constructie en gemakkelijke bediening heeft als de bekende Sb_2S_3 -vidicons, nog bij zeer lage verlichtingsniveaus (1 lux op het voor licht gevoelige oppervlak) aan de eisen van de normale televisie voldoet.

Daar de weergeefkarakteristiek tot zeer grote signaalstromen (1 μA) lineair is en de spectrale verdeling zeer bevredigend ($\lambda_{\text{max}} = 6400 \text{ \AA}$), is het „Plumbicon” speciaal geschikt voor kleurentelevisie. We hebben een kleurencamera met deze buis geconstrueerd die $4\times$ zo gevoelig is als een kleu-

rencamera met 3''-beeldorthicons en daarbij een betere signaal-ruisverhouding en een grotere contrastomvang heeft.

Van het „Plumbicon” zijn verschillende varianten in ontwikkeling of reeds ontwikkeld. Behalve het standaardtype, waarop de bovenvermelde gegevens slaan, wordt een type „Plumbicon” ontwikkeld met een nog verhoogde roodgevoeligheid ($\lambda_{\text{max}} = 7500 \text{ \AA}$). Door gebruik van deze buis wordt de totale gevoeligheid van de kleurencamera nog een factor 3 groter dan bij gebruik van het standaardtype ($f: 4,2$ bij 600 lux op de scène). Door verschuiving van de spectrale gevoeligheid naar nog grotere golflengten is een infrarood „Plumbicon” gerealiseerd, zonder opoffering van de grote gevoeligheid en de grote responsiesnelheid. De wens om bij sommige toepassingen de bediening nog verder te vereenvoudigen, heeft ook geleid tot de ontwikkeling van een elektrostatisch gefocuseerd „Plumbicon”. Voor de naaste toekomst kan de ontwikkeling van nog andere varianten worden verwacht, zoals een „Plumbicon” voor röntgenstralen en een 2''-„Plumbicon”.

GROEP A, IN HOOFDZAAK FUNDAMENTEEL

A1. Onderzoek van oppervlaktoestanden met behulp van foto-emissie, door J. van Laar en J. J. Scheer.

In de spectrale verdelingskrommen van de foto-emissie van halfgeleiders kunnen gewoonlijk twee gebieden worden onderscheiden: een gebied aan de langgolvlige kant, waar het quantumrendement betrekkelijk laag is, en hierop aansluitend een gebied waarin de kromme steil opstijgt. Dit tweede gedeelte kan worden toegeschreven aan een in het inwendige van de halfgeleider plaatsvindend proces waarbij elektronen uit de valentieband tot hoge energieniveaus in de geleidingsband worden aangeslagen en vervolgens naar het vacuüm ontsnappen. Dit heeft men kunnen aantonen door siliciumkristallen met verschillend gehalte aan verontreinigingen in vacuüm te splijten en aan een splijtvlak de foto-emissie te meten.

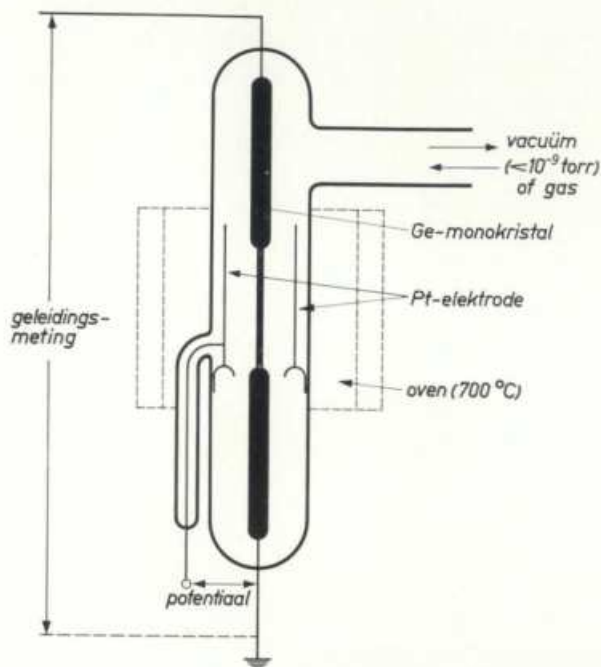
Ten einde het fysische mechanisme op te helderen dat aan het langgolvlige gedeelte van de emissie ten grondslag ligt, hebben wij verschillende experimenten gedaan, die er duidelijk op wijzen dat deze emissie vanuit gevulde oppervlaktoestanden plaatsvindt. Het quantumrendement van deze emissie blijkt evenredig te zijn met de $\frac{1}{2}$ de macht van het

verschil tussen de fotonenenergie en de drempel-energie.

A2. „Schone” germaniumoppervlakken, door M. J. Sparnaay en A. H. Boonstra.

Aan volledig ontgaste germanium-monokristallen zijn in hoogvacuüm ($< 10^{-9}$ torr) en in een bekende gasatmosfeer de eigenschappen van het oppervlak bepaald. De germaniumkristallen waren draadvormig: lengte 25 cm, dikte 1 mm tot 50 micron. De dikte kon worden verminderd door afetsen met behulp van een gas: toelaten van zuurstof bij 700°C geeft aanleiding tot de vorming van GeO , dat bij die temperatuur vluchtig is. Volledige evacuatie, gevolgd door afkoeling tot kamertemperatuur (waarbij alle metingen werden uitgevoerd), leidde tot een oppervlak dat wij als „schoon” beschouwen. Het geleidingsvermogen van de monokristallijne „draad” werd als functie van de druk van verschillende gassen en dampen gemeten. Ook het veld-effect werd bepaald. Te dien einde werd rond het kristal in het vacuümsysteem een platina cilinder geplaatst (zie figuur) en de geleiding van het ger-

manium gemeten als functie van de tussen het platina en het germanium aangelegde spanning. Deze spanning kon van de orde van 10 kV worden gemaakt (positief of negatief). Voor het uitvoeren van deze metingen moesten grote technische moeilijkheden worden overwonnen.



De metingen leverden de volgende resultaten. Aan het gezuiverde oppervlak van het germanium bevindt zich een ruimteladingsgebied dat in geringe mate van type *P* is; geringe hoeveelheden van verschillende gassen ($< 10^{-5}$ torr O_2 , H_2O , CH_3OH , NH_3 , CO , Hg) versterken het *P*-karakter. Andere gassen (H_2 , A , N_2) hebben geen invloed. Toevoeging van O_2 , H_2O , CH_3OH , NH_3 tot hogere druk (10^{-2} torr) vermindert het *P*-karakter. Door geschikte combinatie van gassen kunnen soms ruimteladingen worden verkregen die in geringe mate van type *N* zijn. Door metingen van het veld-effect kon worden uitgemaakt of de ruimteladingsgebieden van type *P* of van type *N* waren. Op het gezuiverde oppervlak is het veld-effect buitengewoon gering, zowel bij positieve als bij negatieve aangelegde spanning. De geïnduceerde ladingen moeten derhalve in dit geval grotendeels opgeslagen zijn in (snelle) oppervlakkniveaus van donor- en acceptorkarakter, waarvan de dichtheid ongeveer 10^{14} cm^{-2} bedraagt. Aan het bestaan van donorniveaus moet worden toegeschreven dat onze „schone” oppervlakken in zo geringe mate van type *P* zijn. Dit spreekt tegen interpretaties die onderstellen dat „schone” oppervlakken sterk *P*-karakter bezitten.

A3. Over de elektrische geleiding van halfgeleidend bariumtitaanaat, door G. H. Jonker.

Volgens Haayman, Dam en Klasens¹⁾ kan halfgeleidend $BaTiO_3$ worden verkregen door geringe hoeveelheden Ba^{2+} -ionen te vervangen door grote driewaardige ionen zoals La^{3+} , of door Ti^{4+} -ionen te vervangen door kleine vijfwaardige ionen zoals Nb^{5+} of Sb^{5+} . Het geleidingsvermogen bij kamertemperatuur vertoont meestal een maximum ter grootte van ongeveer $0,1 \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ bij een concentratie van 0,2-0,3%. Boven 0,6% verdwijnt het geleidingsvermogen. Dit verschijnsel kan worden verklaard als een overgang van de compensatie van vreemde ionen door elektronen tot een compensatie door vacatures.

Een opmerkelijk hoge soortelijke weerstand, van 10^4 - $10^6 \Omega \text{ cm}$, treedt boven de curietemperatuur van $BaTiO_3$ op (ca. 120°C). Deze eigenschap vindt men niet bij monokristallen²⁾ doch alleen bij polykristallijne monsters. Uit de wijze waarop de weerstand afhangt van de frequentie³⁾ en van de veldsterkte⁴⁾ is het nu duidelijk dat dit effect veroorzaakt wordt door korrelgrensweerstand. Gerthsen en Härdtl⁵⁾ hebben het bestaan van zulke weerstanden ook rechtstreeks aangetoond. Ze ontstaan voornamelijk door oppervlakoxydatie.

Bij afkoeling van het monster verdwijnt deze weerstand nabij het curiepunt. Bij sommige monsters gebeurt dit geleidelijk, en het verdwijnen kan dan volgens de theorie van Heywang⁴⁾ worden verklaard door een beïnvloeding van de hoogte van de potentiaalberg door de dielektrische constante. Bij andere monsters echter vindt men bij het curiepunt een plotselinge overgang, die kan worden begrepen door de typische ferro-elektrische eigenschappen van $BaTiO_3$ in aanmerking te nemen. Bij de meeste monsters vindt men een mengsel van deze beide verschijnselen.

¹⁾ P. W. Haayman, R. W. Dam en H. A. Klasens, Duits octrooi no. 929 350 (1955), Nederlands octrooi van 15 februari 1957.

²⁾ G. Goodman, J. Amer. Ceram. Soc. **46**, 48, 1963.

³⁾ O. Saburi, J. Phys. Soc. Japan **14**, 1159-1774, 1959.

⁴⁾ W. Heywang, Solid-state Phys. in Electronics and Telecomm. **4**, 877, 1960.

W. Heywang, Solid-state electronics **3**, 51, 1961.

⁵⁾ P. Gerthsen en K. H. Härdtl, Fachausschuss Halbleiter, 1963 (in druk).

A4. De kritische velden van supergeleidend lood in verband met zijn restweerstand en zijn roosterfouten, door W. F. Druyvesteyn en D. J. van Ooijen.

De restweerstand ρ_r van een supergeleider in de normale toestand kan van grote invloed zijn op

zijn gedrag in de supergeleidende toestand. Bij een ideale supergeleidende draad (dat wil zeggen een draad met lage ϱ_r) wordt de supergeleidende toestand gekenmerkt door weerstand nul ($\varrho = 0$) en door een magnetisatie $M = -H/4\pi$ bij aanleggen van een longitudinaal magnetisch veld H . Overschrijdt H de kritische waarde H_c , dan wordt de normale toestand met $\varrho = \varrho_r$ en $M = 0$ hersteld. De door Ginzburg, Landau, Abrikosov en Gorkov (GLAG) ontwikkelde theorie voorspelt een kritische waarde ϱ_{cr} voor ϱ_r . Is $\varrho_r \geq \varrho_{cr}$, dan wordt het supergeleidende gedrag gekenmerkt door: $M = -H/4\pi$ tot een kritisch veld $H_{c1} < H_c$; $-H/4\pi < M < 0$ voor $H_{c1} < H < H_{c2}$ (gemengde toestand); $M = 0$ voor $H > H_{c2}$ (normale toestand).

Men kan op verschillende wijzen ϱ_r bij een supergeleider vergroten, b.v. door legeren, door koudvervormen of door bestraling. In de laatste gevallen neemt ϱ_r toe ten gevolge van roosterfouten: dislocaties en puntfouten. Experimenten in verschillende laboratoria over supergeleiders met hoge ϱ_r hebben inderdaad aangetoond dat hierbij supergeleiding bij velden ver boven H_c bestaat en dat dan de magnetisatie tussen $-H/4\pi$ en nul ligt, in overeenstemming met de theorie.

Uit vele experimenten kon worden geconcludeerd dat de kritische stroomdichtheid die de supergeleiding bij aanwezigheid van een magnetisch veld kleiner dan H_{c2} opheft, sterk afhangt van de mate van koudvervorming van de supergeleider. Er bestaan theorieën die gebruik maken van enige van de grondgedachten van de GLAG-theorie (gemengde toestand) en die de invloed van de koudvervorming op de kritische stroom kunnen verklaren. Anderzijds zijn er ook verklaringen voor de experimenten voorgesteld waarbij de dislocaties rechtstreeks als supergeleidende kanalen fungeren.

Onze experimenten, die ten doel hadden de GLAG-theorie te toetsen en de rol van roosterfouten na te gaan, hebben tot dusver de volgende resultaten geleverd:

- 1) Magnetisatiemetingen aan een reeks lood-indiumlegeringen geven in overeenstemming met experimenten van Livingston ¹⁾ een waarde van ϱ_{cr} en waarden van H_{c1} en H_{c2} die uitstekend met de theorie kloppen.
- 2) Weerstandsmetingen aan dezelfde legeringen tonen het bestaan van supergeleiding ($\varrho < 0,01 \varrho_r$) in velden veel groter dan H_{c2} . Dit kan door de GLAG-theorie niet worden verklaard.
- 3) Hoewel de ϱ_r van zuiver lood dat bij 78 °K koudgewalst of met neutronen bestraald is, kleiner is dan ϱ_{cr} , wordt met de weerstandsmet-

thode supergeleiding boven H_c gevonden. $\Delta H/\Delta \varrho_r$ (ΔH = toeneming van het kritische veld, $\Delta \varrho_r$ = toeneming van ϱ_r) heeft na koudwalsen en na bestraling dezelfde waarde, en deze is vele malen groter dan de waarden van $\Delta H/\Delta \varrho_r$ die bij $\varrho_r > \varrho_{cr}$ in het geval van de lood-indiumlegeringen zijn gevonden.

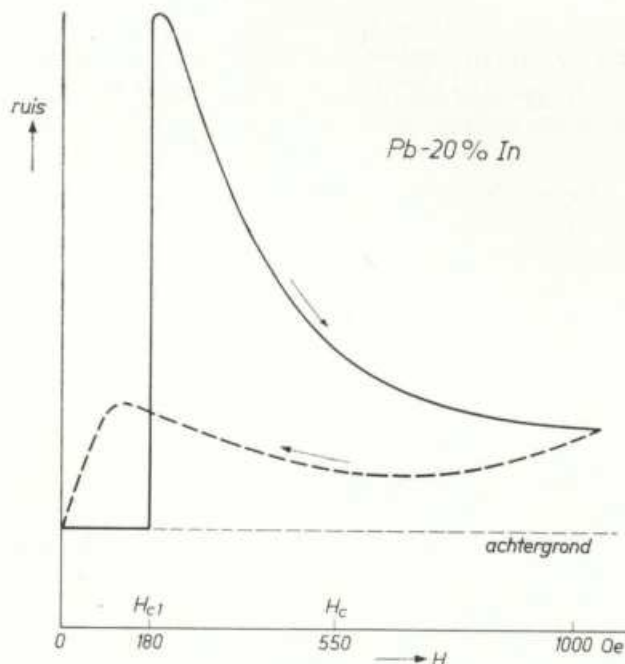
- 4) Uit herstelproeven aan de koudgewalste en bestraalde draden werd gevonden dat het kritische veld en de kritische stroomdichtheid (bij velden kleiner dan het kritische veld) niet alleen door dislocaties toenemen, maar ook door puntfouten. Het schijnt dat niet de aard van de roosterfouten de bepalende factor is, doch alleen de restweerstand die hierdoor wordt veroorzaakt.

¹⁾ J. D. Livingston, Phys. Rev. **129**, 1943, 1963.

A5. Een analogon van Barkhausen-sprongen in supergeleiders, door D. J. van Ooijen en W. F. Druyvesteyn.

Bij aanwezigheid van een uitwendig magnetisch veld heeft een supergeleider een negatieve magnetisatie ten gevolge van een gedeeltelijke uitstoting van het veld (Meissner-effect). Voert men de veldsterkte op, dan zal het veld op den duur gaan binnendringen, hetgeen ten slotte leidt tot opheffing van de supergeleidende toestand. Dit binnendringen van het veld gaat gepaard met een verandering van de magnetisatie van de supergeleider. Plaatst men de supergeleider in een opneemspoel, dan blijkt hierin bij het binnendringen van het veld een ruisspanning te worden opgewekt. Uit deze waarneming concluderen wij dat het binnendringen van het veld niet continu gebeurt, doch in kleine discontinue sprongen. Het verschijnsel vertoont enige gelijkenis met de welbekende Barkhausen-sprongen, die in een ferromagnetische stof optreden. Bij een zachte supergeleider, zoals b.v. zachtgegloeid zuiver lood, treedt een ruisspanning op bij de overgang van de supergeleidende naar de normale toestand (of omgekeerd), bij de veldsterkte H_c , het thermodynamische kritische veld. Bij een supergeleider van de tweede soort daarentegen, b.v. een legering van lood en indium, begint de ruisspanning op te treden bij een veldsterkte $H_{c1} < H_c$, waar de supergeleider zich gaat splitsen in een mengsel van supergeleidende en normaal geleidende gebieden. Hoewel afnemend in sterkte, blijft de ruis hoorbaar tot veldsterkten $H > H_c$. Laat men het veld afnemen, dan blijft de

ruis waarneembaar tot veldsterkte nul; de supergeleider vertoont dus een hysteresis (zie de grafiek). Met behulp van een geluidsregistratie wordt de ruis zoals die bij verschillende supergeleiders werd waargenomen, gedemonstreerd.



A6. Een supergeleidende unipolaire dynamo voor de opwekking van grote persisterende stromen en het probleem van het bekrachtigen van een supergeleidende spoel, door J. Volger.

In de naaste toekomst zal men wellicht voor het bekrachtigen van supergeleidende spoelen grotere persisterende stromen nodig hebben dan tot dusver ooit gebruikt. Leidingen die zeer sterke stromen (> 300 A) aan een spoel in een heliumkryostaat moeten toevoeren, veroorzaken echter moeilijkheden, doordat zelfs bij de gunstigste constructie van de doorvoering de onvermijdelijke joulewarmte en de verliezen door warmtegeleiding aanleiding geven tot het verlies van grote hoeveelheden vloeibaar helium. Deze moeilijkheid zou worden opgelost als

men een supergeleidende gelijkstroomgenerator in het heliumbad zelf ter beschikking had.

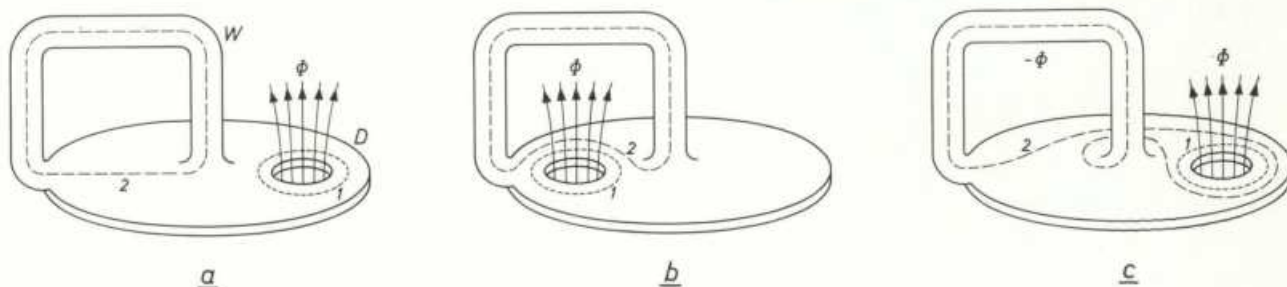
In ons laboratorium wordt nu aan een nieuw soort generator gewerkt, die kan worden beschouwd als een supergeleidende variant van de unipolaire dynamo. Het essentiële bestanddeel hiervan is een supergeleidende metalen plaat met een bepaalde topologie, waarin een gebiedje met normale geleiding en met hierin verlopende magnetische krachtlijnen aanwezig is, dat op bepaalde wijze door de plaat beweegt. In wezen vormen de dynamo en de spoel te zamen een drievoudig samenhangend lichaam, waarin aan de wet van behoud van de magnetische flux moet worden voldaan, ook wanneer het lichaam (of feitelijk het supergeleidende gedeelte hiervan) wordt vervormd. Aangetoond wordt, hoe de genoemde beweging de flux in de spoel brengt en hoe daarbij de in het geding zijnde integratiecontour wordt opgewikkeld om de normaal geleidende zone (zie de tekeningen a-c).

Er wordt een laboratoriummodel van de dynamo getoond en de stroomopwekking voor het voeden van een supergeleidende magneetspoel met persisterende stroom wordt gedemonstreerd. Voorts wordt het optreden van slip bij snel lopen van de dynamo besproken, en het door de opgewekte stroom veroorzaakte reactiekoppel wordt gedemonstreerd.

A7. Anomale doorlating van röntgenstralen in perfecte kristallen, door D. Polder.

De schijnbare absorptiecoëfficiënt van röntgenstralen in een perfect kristal wordt zeer klein wanneer de röntgenbundel bij zijn doorgang door het kristal een braggreflexie ondergaat. Dit verschijnsel noemen we de anomale doorlating van röntgenstralen. Het wordt door de dynamische theorie van de röntgendiffractie verklaard.

In dit laboratorium heeft Okkerse¹⁾ proeven gedaan aan dislocatievrije germaniumkristallen. Hij bevestigde o.a. dat de resterende absorptie van de anomaal doorgelaten bundel wordt veroorzaakt door de eindige grootte en de trillingen van de atomen, en hij heeft de bijbehorende debyetemperatuur



tuur bepaald. Hij heeft ook de invloed van opzettelijk aangebrachte dislocaties en van een beschadiging van het oppervlak uitvoerig onderzocht ²⁾.

Penning en de schrijver hebben de theorie voor elastisch vervormde kristallen uitgebreid ³⁾. Zij hebben de gekromde baan van de bundel in zulke kristallen en de hierdoor toegenomen absorptie berekend, en zij hebben laten zien dat een kromtestraal van de atoomvlakken van 1 km gemakkelijk kan worden aangetoond. Hierop aansluitende experimenten van Okkerse ⁴⁾ aan kristallen die door buigen of door een temperatuurgradiënt elastisch waren vervormd, kloppen tot in bijzonderheden met de theorie en leiden tot een onafhankelijke bepaling van de structuurfactor.

Van Bommel ⁵⁾ heeft gebruik gemaakt van een divergerende röntgenstralenbundel, afkomstig uit een puntvormige bron vlak voor een schijfje van een perfect germaniumkristal. Het intensiteitspatroon op een fotografische film achter het schijfje is kenmerkend voor anomale doorlating. Veranderingen van het patroon die teweeg gebracht worden door buigen van het monster, worden door de theorie voor vervormde kristallen nauwkeurig voorspeld ⁶⁾.

Door opeenvolgende anomale doorlating en braggreflexie aan de twee armen van een L-vormig perfect germaniumkristal heeft Okkerse ⁷⁾ details van de dynamische theorie kunnen verifiëren en wederom de structuurfactor kunnen bepalen. Een verandering van 10^{-7} radialen in de relatieve oriëntatie van de twee armen kan nog worden aangetoond. Met deze opstelling kan ook op elegante wijze worden gedemonstreerd dat de brekingsindex voor röntgenstralen van materialen zoals paraffine kleiner dan 1 is.

Enige van de in dit overzicht genoemde onderwerpen worden in de voordracht besproken.

¹⁾ B. Okkerse, Philips Res. Repts. 17, 464, 1962.

²⁾ H. Goemans en B. Okkerse, ongepubliceerd laboratoriumverslag.

³⁾ P. Penning en D. Polder, Philips Res. Repts. 16, 419, 1961.

⁴⁾ B. Okkerse en P. Penning, Philips Res. Repts. 18, 82, 1963.

⁵⁾ A. J. van Bommel, wordt gepubliceerd.

⁶⁾ D. Polder en P. Penning, wordt gepubliceerd.

⁷⁾ B. Okkerse, wordt gepubliceerd.

A8. Het polytypisme van SiC: groei, stabiliteit en eigenschappen van SiC-kristallen, door W. F. Knippenberg.

De groei van kristallijn siliciumcarbide en het polymorfisme van deze stof zijn onderzocht door geschikte chemische reacties te laten plaatsvinden en de reactieproducten aan warmtebehandelingen te onderwerpen. De structuur en chemische samen-

stelling van de verkregen kristallen werden vervolgens geanalyseerd en de samenhang met de groeiomstandigheden onderzocht.

Bij een constante temperatuur en bij evenwicht met de dampatmosfeer ontwikkelt zich polykristallijn siliciumcarbide door groei van evenwijdige lagen tot dunne lamellen. Terwijl de structuur met kubische symmetrie zich als een onstabiele fase gedraagt en als zodanig bij alle temperaturen kan ontstaan, hangt de vorming van de hexagonale en trigonale modificaties op statistische wijze van de temperatuur af.

De stabiliteit en het optreden van de polymorfe vormen van siliciumcarbide worden ten slotte in verband gebracht met de gevoeligheid van de elektronenconfiguratie van de stof ten opzichte van geringe veranderingen in de structuur en met de kinetika van kiemvorming en groei. Het blijkt dat de tegenwoordige theorieën over de groei grondig moeten worden herzien om de waargenomen groeiverschijnselen te verklaren.

A9. Sensibilisatie van de fotogeleiding van antraceen door organische kleurstoffen, door B. J. Mulder.

De fotogeleiding van antraceen, gemeten met waterelektrodes aan weerszijden van een plaatvormig kristal, heeft zijn oorsprong aan één van de beide kristaloppervlakken (nl. datgene dat met de positieve elektrode verbonden is). Absorptie van een lichtquantum in het inwendige van het kristal geeft aanleiding tot een aangeslagen toestand (exciton), die naar het oppervlak kan migreren. Daar verdwijnt het exciton door een proces waarbij een elektron van het antraceen aan de oplossing wordt afgegeven en een positief geladen antraceenmolecuul overblijft, dat als een beweeglijk gat fungeert. Het gat beweegt door het kristal heen naar het met de negatieve elektrode verbonden oppervlak, waar het ontladen wordt.

Experimenten in dit laboratorium hebben aangetoond dat de adsorptie van zekere organische kleurstoffen aan het positieve kristaloppervlak de waargenomen fotostroom vergroot. In dit geval kunnen excitonen in of nabij het oppervlak hun energie aan het kleurstofmolecuul overdragen, en de resulterende aangeslagen kleurstofmoleculen kunnen vervolgens met een zeer hoog rendement elektronen uit het antraceen opnemen. Dit mechanisme wordt gestaafd door de waarneming dat een toename van de fotostroom alleen optreedt bij kleurstoffen waarvan het absorptiespectrum, althans in zekere mate, het emissiespectrum van antraceen overlapt; dit is immers een noodzakelijke — hoewel niet voldoende — voorwaarde voor ener-

gie-overdracht. Een nog sterker argument voor het geschetste beeld wordt geleverd door het feit dat in het antraceneen een fotostroom ook blijkt te kunnen worden verkregen door directe optische excitatie van kleurstoffen door licht dat niet wordt geabsorbeerd door het antraceneen.

A10. Magnetische voorkeursorientaties in hexagonale oxydes, door U. Enz.

De anisotropie-eigenschappen van enkele hexagonale oxydes zijn onderzocht. Het is bekend dat de anisotropie-energie F_K door een machtreeks kan worden beschreven. Door alleen de eerste en tweede term $K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta$ van deze reeks in aanmerking te nemen, kan men aantonen dat drie verschillende soorten voorkeursorientatie van de magnetisatievector ten opzichte van de kristalas mogelijk zijn: een voorkeursrichting, een voorkeursvlak en een voorkeurskegel. Verschillende stoffen worden besproken: $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (ferroxdure) heeft een voorkeursrichting. $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ (Zn_2Y) heeft een voorkeursvlak. $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ (Co_2Y) heeft bij lage temperaturen een voorkeurskegel met een halve openingshoek van ongeveer 70° en bij hogere temperaturen een voorkeursvlak; deze stof heeft een anisotropie met zesvoudige symmetrie. Onlangs is nog een andere stof ontdekt die bij lage temperaturen een voorkeurskegel heeft, nl. $\text{Ba}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ (Ni_2Y). De anisotropieconstanten van al deze verbindingen zijn bepaald door koppelmetingen. De anisotropie-eigenschappen van het materiaal $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ (Co_2Z) worden gedemonstreerd. Deze stof is bijzonder interessant omdat hij in opeenvolgende temperatuurgebieden eerst een voorkeurskegel, vervolgens een voorkeursvlak en ten slotte een voorkeursrichting vertoont.

A11. Toepassing van niet-conventionele klassieke mechanica bij het ontwerp van een klaverblad-cyclotron, door H. L. Hagedoorn.

Bij het ontwerp van een cyclotron met azimuthaal variërend veld (klaverbladcyclotron) moeten vele takken van de moderne wetenschap en techniek worden toegepast. Een gedeelte van het ontwerp dat geheel en al steunt op toepassing van de zuivere klassieke fysica, is de berekening van de deeltjesbanen in een magnetisch veld van zeer ingewikkelde vorm. Uit deze berekening kan de nauwkeurige vorm van het magneetveld worden afgeleid dat voor het verkrijgen van de gewenste banen vereist is.

Hoewel in principe de expliciete bewegingsvergelijkingen voor geladen deeltjes in het magnetische

veld rechtstreeks kunnen worden gebruikt, wordt een grote vereenvoudiging en een veel dieper inzicht verkregen indien men de hamiltoniaanse formulering van het probleem als uitgangspunt kiest. Er kan dan worden aangetoond dat de deeltjesbanen in een gegeven magnetisch veld kunnen worden nabootst door een dunne draad waardoor een stroom vloeit. Daar dit natuurlijk geen methode is om de uiteindelijk vereiste vorm van het magnetische veld te bepalen, moet men expliciete mathematische uitdrukkingen voor de deeltjesbanen opstellen. Ook dit is mogelijk zonder oplossing van de bewegingsvergelijkingen, die zeer ingewikkelde niet-lineaire differentiaalvergelijkingen zijn. Wij zijn hierbij uitgegaan van een enigszins ongewone vorm van de hamiltonvergelijking voor de deeltjes en hebben hierop kanonieke transformaties toegepast, die de tijdafhankelijkheid elimineren en ten slotte rechtstreeks leiden tot de gewenste mathematische uitdrukkingen voor de banen.

A12. Optisch onderzoek aan gaslasers, door H. de Lang.

Gaslasers met totaal reflecterende prisma's worden besproken en gedemonstreerd. In plaats van de gebruikelijke 90° -dak-prisma's wordt een niet-gedegenereerde configuratie met essentieel van 90° verschillende prismahoeken getoond. Deze biedt de mogelijkheid tot niet-gedegenereerde, cyclische, richtings- en plaatsrepetente voortplanting van vlakke golven; bovendien is zij gemakkelijker te justeren. In het bijzonder wordt een He-Ne-laser ($1,15 \mu\text{m}$) met een tetraëdrische configuratie van vier prismavlakken gedemonstreerd die in het geheel geen kritische justering vereist.

Een ander onderzoek betreft de bestudering van het gedrag van afzonderlijke trillingswijzen van gaslasers. Ten einde in staat te zijn een afzonderlijke trilling van de gelijktijdig optredende trillingen te isoleren, werd een confocale interferometer van 1 meter lengte gebouwd (scheidend vermogen 6×10^8 bij $1,15 \mu\text{m}$), die als frequentie-analysator wordt gebruikt. De analyse van de straling van een kleine He-Ne-laser bij $1,15 \mu\text{m}$ wordt gedemonstreerd. De laatste demonstratie betreft de polarisatie-eigenschappen van de trillingen van een gaslaser onder invloed van een longitudinaal magnetisch veld.

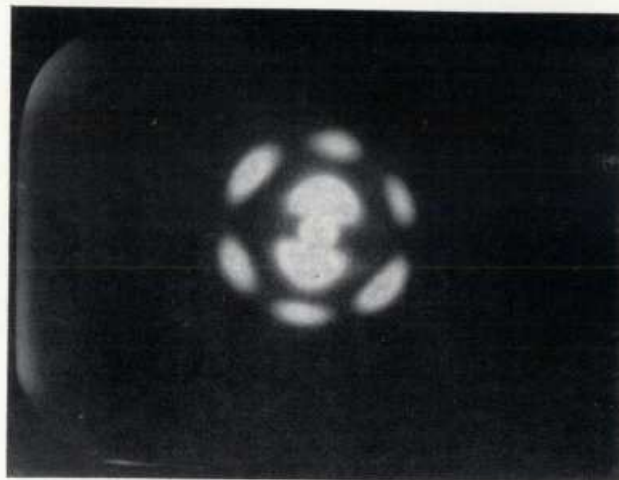
A13. Theorie der trillingswijzen van een laser-interferometer, door M. J. Offerhaus.

De bundel van de kleine He-Ne-gaslaser die in

dit laboratorium is ontwikkeld¹⁾, vertoont patronen van trillingswijzen, die een cyclus doorlopen wanneer het gasontladingskanaal door verwarming een halve golflengte uitzet. Ter verklaring van deze cyclus van trillingspatronen is een theorie opgesteld, waarbij de scalaire golfvergelijking voor een Fabry-Pérot-trilholte tussen twee kleine evenwijdige vlakke cirkelvormige spiegels moest worden opgelost. De bundel mag niet aanzienlijk afwijken van een vlakke golf die zich langs de cilinderas voortplant en waarvan de amplitudeverdeling dicht rondom deze as is geconcentreerd.

Iedere golffunctie blijkt een dwarsdoorsnede met een verdeling volgens Laguerre-Gauss te hebben; deze beweegt langs de cilinderas als een lopende golf met een effectieve golflengte die enigszins varieert met de symmetrie-orde en de doorsnede van het patroon.

De resonantievoorwaarde voor een staande golf bepaalt de doorsnede van elk patroon. De keuze van een aantal patronen uit de vele mogelijke trillingswijzen wordt door verschillende factoren bepaald: de diameter van de cilinder, fazefouten aan de rand van het patroon, de ruimtelijke verdeling van de gasontlading en concurrentie tussen elkaar overlappende trillingswijzen. Anderzijds kan



in bepaalde gevallen interferentie tussen elkaar enigszins overlappende patronen de fazefout verminderen, zodat superposities ontstaan zoals men er een op de foto ziet (ringen met radiaal symmetriegetal $m = 0, 1$ en 3).

De verschillende experimenteel gevonden patronen en de volgorde waarin zij bij toeneming van de lengte van het ontladingskanaal optreden, komen goed overeen met onze theoretische beschouwingen.

¹⁾ H. G. van Bueren, J. Haisma en H. de Lang, *Physics Letters* 2, 340, 1962.

GROEP B, TOESTELLEN EN MATERIALEN

B1. Inhomogeniteit en elektronenenergieverdeling van thermisch emitterende katodes, door C. G. J. Jansen, A. Venema en Th. H. Weekers.

Bij de theoretisch afgeleide vergelijking voor de thermische emissie wordt ondersteld dat de katode een homogeen emitterend oppervlak heeft. De beste benadering voor zulk een katode, gebruikt in een planparallele diode, is het oppervlak van een monokristal. De in de praktijk gebruikte katodes echter bezitten in het algemeen een inhomogeen emitterend oppervlak, niet alleen ten gevolge van de verschillen in uittree-arbeid over het oppervlak, maar ook ten gevolge van hun ruwheid en hun weerstand.

Verscheidene theoretische studies hebben zich beziggehouden met de vraag, hoe de verschillen in uittree-arbeid en in ruwheid, die de zg. vlekkerigheid van het katodeoppervlak veroorzaken, de I - V -karakteristiek van een diode beïnvloeden. Experimenteel is het bestaan van vlekken aangetoond door elektronenoptische afbeelding, maar deze techniek verschaft slechts kwalitatieve inlichtingen over de toestand van het katodeoppervlak. Bovendien zijn de omstandigheden waaronder de katode functioneert in een emissie-elektronenmicroscop,

in het algemeen anders dan in elektronenbuizen.

De auteurs beschrijven nu een andere methode, die de gewenste informatie op meer kwantitatieve wijze verschaft en bruikbaar is voor verschillende soorten praktische katodes, die onder vrijwel normale omstandigheden functioneren.

De meetopstelling bestaat uit een vlakke katode en een hiermee evenwijdige anode met een gaatje (diameter $10\ \mu\text{m}$). Terwijl men de katode in rechthoekige impulsen van de orde van 1 microseconde zijn verzadigingsstroom laat leveren, wordt het katodeoppervlak met het anodegat afgetast. Door de stroom naar een collector te meten die achter dit gat is geplaatst, vindt men de verdeling van de verzadigingsstroom over het katodeoppervlak, met een scheidend vermogen van ongeveer $25\ \mu\text{m}$. Deze verdeling van de verzadigingsstroom kan omgezet worden in een verdeling van een schijnbare uittree-arbeid. Op deze wijze is het gedrag van een wolframmonokristal, van L-katodes, van geïmpregneerde katodes en van $(\text{BaSr})\text{O}$ -katodes als functie van hun brandduur onderzocht. Bij het wolframmonokristal is een zeer smalle verdeling van de uittree-arbeid gevonden. Van de overige soorten katodes, die polykristallijn en poreus zijn, blijkt de L-katode

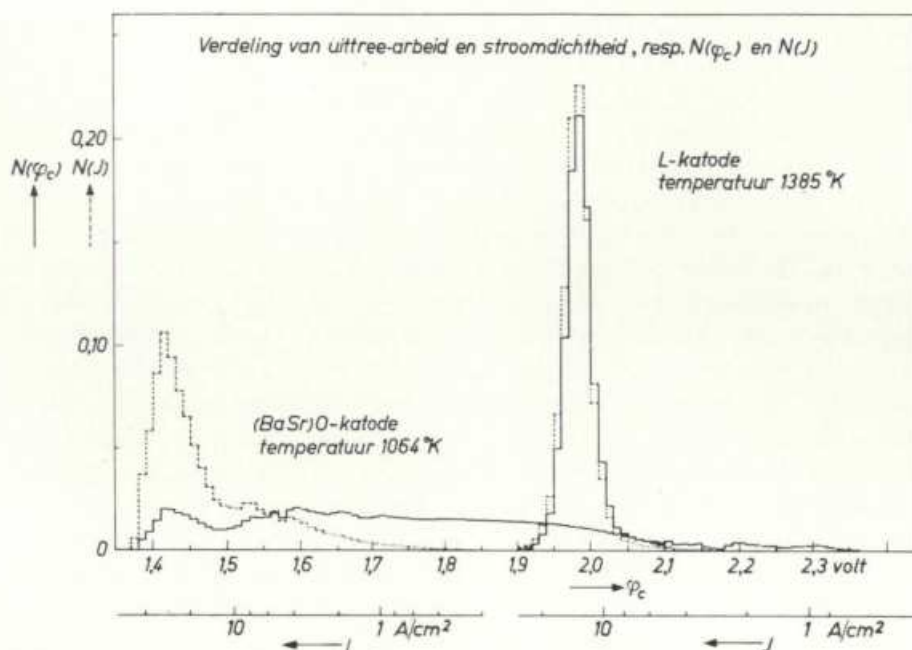
het oppervlak van een monokristal het best te benaderen (zie figuur). Bij de (BaSr)O-katode vertoont de verdeling van de uittree-arbeid een aanzienlijke verbreding naar de zijde der hoge waarden, bovendien moet hierbij het grootste gedeelte van de verzadigingsstroom worden toegeschreven aan een betrekkelijk klein aantal gebieden met geringe uittree-arbeid.

Verdere inlichtingen kunnen worden verkregen uit de verdeling van de elektronenenergie. De bij een constante katodestroom gemeten remveldkarakteristiek van de collectorstroom achter het anodegat (in dit geval met een diameter van 100 μm) geeft informatie over de weerstand en over de verdeling van de oppervlakpotentiaal van de katode. Bovendien wijst een knie in deze karakteristiek die bij (BaSr)O-katodes gevonden werd erop dat slechts een klein gedeelte van het katodeoppervlak uit gebieden met geringe uittree-arbeid bestaat, in overeenstemming met metingen over de verdeling van de uittree-arbeid en met een vergrote elektronenoptische afbeelding. De genoemde gebieden leveren echter in het verzadigingsgebied en in een groot gedeelte van het ruimteladingsgebied van de I - V -karakteristiek het belangrijkste deel van de stroom.

Dit gedrag van een (BaSr)O-laag is niet alleen van invloed op de waarde van de factor A in de emissieformule, maar ook op de vorm van de I - V -karakteristiek en op de ruis van de katode.

B2. Ontwerp van magnetische afbuigspoelen met behulp van de derde-orde-beeldfoutentheorie, door J. Kaashoek.

Bij het weergeven van kleurentelevisie-beelden is niet alleen het scheidend vermogen zeer gevoelig voor afbuigfouten, maar hetzelfde geldt naar gelang van de weergeefmethode ook voor het elkaar dekken van de drie grondkleurbeelden en de zuiverheid der kleuren. De fouten krijgen met toenemende afbuighoek meer invloed. Dit heeft aanleiding gegeven tot een nader onderzoek over afbuigsystemen die in combinatie met een bepaalde weergeefbuis een optimale beeldkwaliteit leveren.



De theorie der afbuigfouten is door Glaser en Wendt reeds ongeveer 20 jaar geleden ontwikkeld. Aangezien de praktische toepassing van deze theorie zeer uitgebreide numerieke berekeningen vereist, gaf zij indertijd als enige directe resultaat een beter algemeen begrip voor de aard der afbuigfouten. Toen men vond dat er een vrij eenvoudig verband tussen de spoelvorm en de veldverdeling bestaat, konden er uit de theorie ook kwalitatieve richtlijnen voor het ontwerp van spoelen worden afgeleid. Het volle profijt uit de theoretische berekeningen kan men echter slechts trekken wanneer de fouten kwantitatief worden bepaald, hetgeen mogelijk geworden is sinds de invoering van de elektronische rekenmachine.

In deze voordracht wordt eerst de afbuigtheorie kort uiteengezet. Er volgt dan een discussie van de theoretisch berekende derde-ordefouten wat betreft hun afhankelijkheid van de afbuighoek, van de bundelparameters en van de verdeling van het magnetische veld. Algemeen kan worden geconcludeerd dat een geheel foutloze afbuiging niet mogelijk is. In de meeste gevallen is het echter voldoende als slechts sommige fouten afwezig zijn, en er bestaan inderdaad bepaalde afbuigende velden die dan goede resultaten geven. Deze veldverdelingen kunnen uit numerieke berekeningen van de afbuigfouten worden afgeleid, en het is gebleken dat een nauwkeurige kennis hiervan leidt tot een aanzienlijke vereenvoudiging van de ontwerpmethode van de spoelen. Als voorbeeld van de praktische toepassing van de theorie behandelt de auteur enkele aspecten van het ontwerp van een afbuigstelsel voor een weergeefbuis met schaduwmasker voor kleurentelevisie.

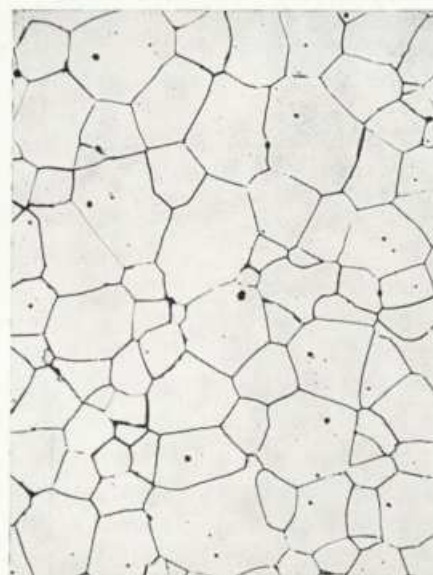
B3. Versterking en opwekking van microgolven door wisselwerking van een elektronenbundel met een plasma, door K. R. U. Weimer.

Het optreden van ruimteladingsgolven in een systeem dat uit een elektronenbundel en een plasma bestaat, wordt besproken. Onder bepaalde omstandigheden, indien de veldfrequentie kleiner dan of gelijk aan de plasmafrequentie is, kan in het systeem een toenemende dichtheidsmodulatie optreden. Deze toeneming van de modulatie kan worden gebruikt voor het versterken van microgolven. Een buis die het versterkingseffect van de wisselwerking tussen bundel en plasma toont, wordt gedemonstreerd. Deze buis lijkt op een klystron met twee trilhouten, dat bij 4,2 GHz werkt en waarbij in de veldvrije ruimte een kwikontlading kan worden onderhouden. Er treedt een wisselwerking tussen de gemoduleerde bundel en het plasma op en hierdoor kan een aanzienlijke versterking worden verkregen.

Systemen met een bundel in een plasma zijn aantrekkelijk daar geen uitwendige keten nodig is om een toenemende modulatie te verkrijgen. Daardoor kunnen deze systemen op den duur misschien ook tot interessante bronnen van hoogfrequentievermogen in het gebied van de millimetergolven leiden. Om zulk een bron te realiseren, is echter een opwekking van de modulatie zonder toepassing van een van te voren reeds gemoduleerde bundel noodzakelijk. Een nieuwe en eenvoudige modulatiemethode wordt inderdaad toegepast in een andere buis, die op een lopendegolfbuis lijkt. Deze buis is met kwikdamp gevuld en de elektronenbundel produceert zelf een plasma, dat zich uitstrekt over de hele lengte van de bundel en dat dicht genoeg is om een wisselwerking van bundel en plasma bij 4,2 GHz te verkrijgen.



a



b

B4. Ferrieten met geringe porositeit, door A. L. Stuijts.

In het fabricageproces van de polykristallijne ferrieten speelt de warmtebehandeling een essentiële rol. Gedurende deze warmtebehandeling vinden twee reacties plaats: de reactie in de vaste toestand tussen de gemengde oxydepoeiders, waarbij de spinelfaze wordt gevormd, en een sinterreactie, die van het poeder een samenhangend lichaam maakt.

Het gesinterde lichaam heeft verschillende microstructuureigenschappen die nog aan variatie onderhevig zijn. Aangezien een groot aantal magnetische, elektrische en mechanische eigenschappen van deze microstructuureigenschappen afhangen, is het van het grootste belang het sinterproces goed in de hand te hebben. Het mechanisme van het tijdens het sinteren optredende materiaaltransport, dat leidt tot een verdichting van het lichaam en dus tot een daling van de porositeit, wordt tamelijk goed begrepen. De keramische techniek is echter nog lang niet ver genoeg om ons in staat te stellen elke microstructuureigenschap volgens plan en onafhankelijk van de andere te veranderen. De voornaamste storende factor is de korrelgroei, die bij de warmtebehandeling optreedt.

Fundamentele onderzoeken over het sinterproces en de korrelgroei van ferrieten die uit verschillende grondstoffen waren vervaardigd en op verschillende manieren werden behandeld, hebben het mogelijk gemaakt vrijwel porievrije ferrieten te fabriceren. Het komt daarbij vooral aan op de keuze van de grondstoffen en wel in het bijzonder op hun zuiverheid en deeltjesgrootte, en verder op een volledige aanpassing van het fabricageproces aan deze poeders, vooral met het oog op de homogeniteit. De

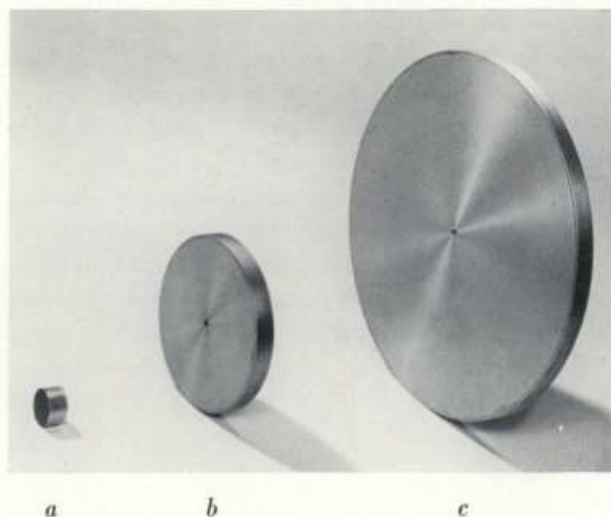
chemische samenstelling speelt eveneens een essentiële rol. De laagste porositeitswaarden werden verkregen met samenstellingen gebaseerd op nikkel-zinkferrieten met een gering overschot van tweewaardig metaaloxijde ten opzichte van de stoichiometrische samenstelling. Er hoeft echter geen tweede fase aanwezig te zijn. De microfoto's (vergroting 400×) laten de microstructuur zien van a) een normaal ferriet en b) een ferriet met geringe porositeit.

De door ons verkregen ferrieten met geringe porositeit vertonen zeer interessante eigenschappen. Ze zijn b.v. uitstekend geschikt voor magnetische schrijfkoppen van ingewikkelde constructie. De piëzomagnetische koppelconstante is buitengewoon groot. De magnetische eigenschappen bij hoge frequenties worden besproken in voordracht no. B5.

B5. Ferrieten met geringe verliezen en hoge permeabiliteit bij frequenties van de orde van 1 GHz, door J. Verweel.

Met behulp van de keramische technieken die in de voordracht no. B4 zijn besproken, kunnen Ni-Zn-ferrieten worden vervaardigd die een zeer geringe porositeit bezitten. Bij magnetisatie in een geschikt statisch veld H hebben deze ferrieten een redelijk hoge waarde (10-20) van de transversale hoogfrequente permeabiliteit en tegelijk opmerkelijk geringe verliezen, terwijl beide vrijwel onafhankelijk zijn van de frequentie tot ca. 2000 MHz. Deze eigenschappen worden gedemonstreerd door op een katodestraaloscilloscoop zichtbaar te maken hoe de resonantiefrequentie en de kwaliteitsfactor van een verzilverd ferrietlichaam met H variëren. Uit het verloop kan worden afgeleid dat de permeabiliteit varieert tussen 25 en 6, bij een verliesfactor die varieert van minder dan 1% tot ongeveer 2%.

Op de foto ziet men een dergelijk ferrietlichaam (a, diameter 2 cm). Zijn resonantiefrequentie kan magnetisch worden gevarieerd tussen de resonantie-

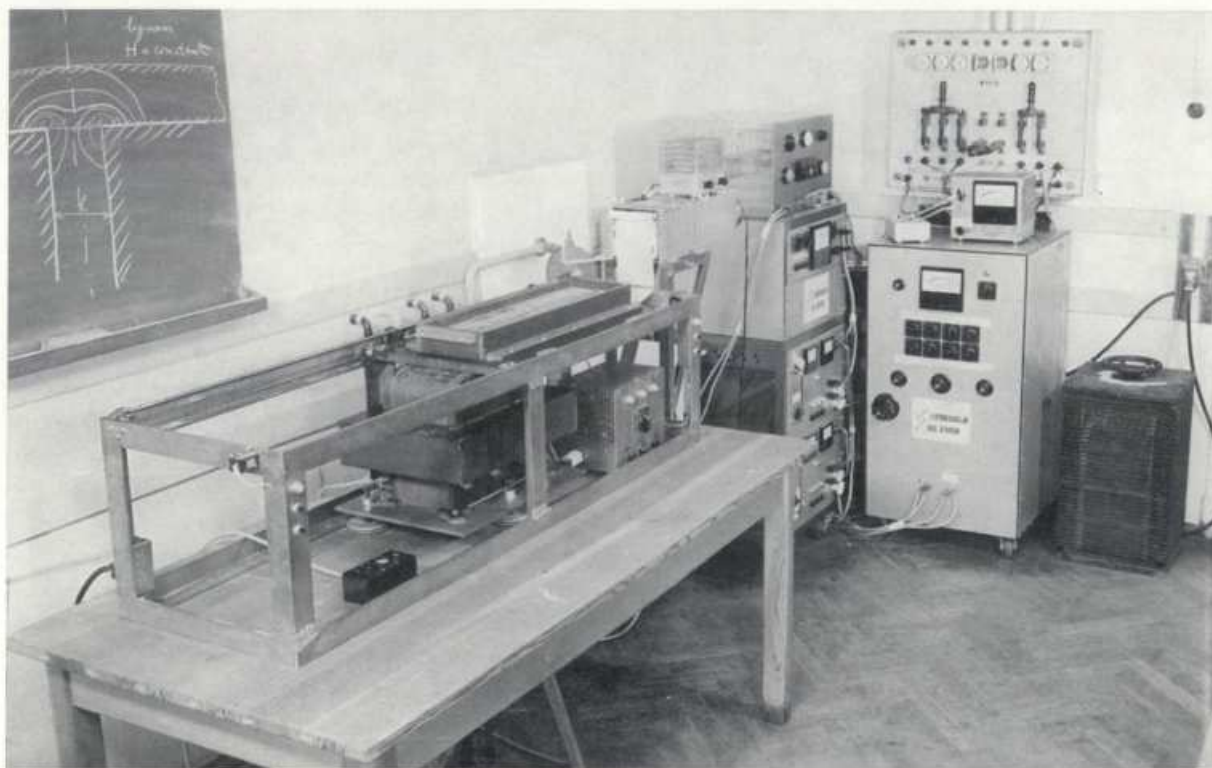


frequenties (in dezelfde trillingswijze) van de trilhouten (b) en (c).

B6. Modelproeven over het proces van magnetische registratie, door D. L. A. Tjaden en J. Leyten.

Voor een dieper inzicht in het proces van magnetische registratie zijn meer gedetailleerde experimentele gegevens nodig betreffende de grootte en richting van de magnetisatie als functie van de plaats in de magnetische laag van de band. Deze gegevens kan men zich niet door rechtstreekse metingen verschaffen.

Om deze moeilijkheid te overwinnen, hebben wij een model van de band en van de schrijfkop gecon-



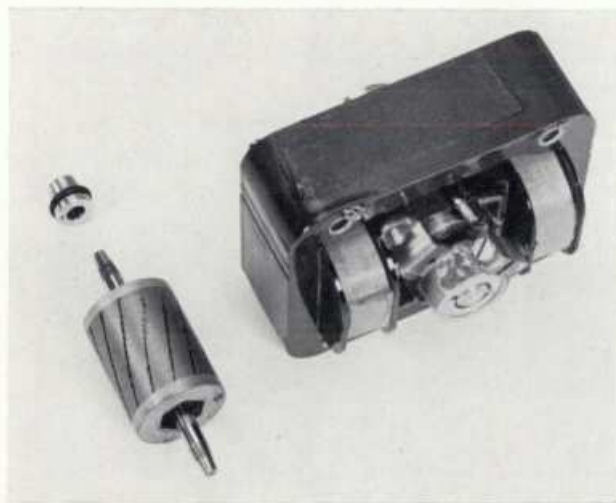
strueerd waarbij de belangrijkste afmetingen met een schaalfactor van ongeveer 5000 zijn vergroot. Uit de „band” worden schijfvormige monsters genomen, die met behulp van een speciaal ontworpen magnetometer worden gemeten.

De door de registratie verkregen magnetisatie kan worden onderzocht als functie van verschillende parameters, b.v. de signaalstroom, de bijstroom en de golflengte van het geregistreerde signaal. Ook kan de registratie van trapfuncties worden bestudeerd.

Na een demonstratie van het model (zie de foto op de vorige bladzijde) worden enkele resultaten besproken.

B7. Zelfwerkende lagers en lagers met uitwendige drukvoorziening, door E. A. Muijderland.

Smering is noodzakelijk overal waar krachten worden overgebracht van bewegende op stilstaande machine-onderdelen. Onze onderzoekingen hebben betrekking op „volle-filmsmering”. Dit houdt in dat de lageroppervlakken volledig van elkaar gescheiden zijn („zweeflager”); het laagje tussen de lageroppervlakken kan uit ieder willekeurig viskeus medium bestaan, zoals b.v. lucht, water, olie.



Om de genoemde scheiding in de praktijk te realiseren, heeft men twee essentieel verschillende mogelijkheden; de ene berust op het principe van de zelfwerkende smering, de andere op het principe van de smering waarbij de druk aan een uitwendige bron wordt ontleend. Het fysische mechanisme dat aan deze beide mogelijkheden ten grondslag ligt, wordt kort toegelicht, waarbij speciaal de nadruk wordt gelegd op het zelfwerkende lager. Deze laatste lagers worden iets uitvoeriger behandeld, daar het spiraalgroeflager ¹⁾ hiertoe behoort, dat in dit laboratorium zeer uitvoerig is onderzocht. Dit soort

lager lijkt bijzonder geschikt voor axiale lagers van kleine afmetingen.

Aan het einde van de voordracht worden toestellen gedemonstreerd waarin elk der beide soorten zweeflagers is toegepast. Zowel olie- als luchtlagers van beide soorten worden vertoond. In het bijzonder wordt de aandacht gevestigd op de met *vet* gesmeerde spiraalgroeflagers: het ziet er naar uit dat we hiermee zeer dicht bij de praktische realisatie van een ideaal zweeflager voor kleine diameters gekomen zijn. De foto toont een dergelijk lager van conische vorm, toegepast in een kleine elektromotor (diameter van het asje 5 mm); deze lagervorm kan zowel axiale als radiale krachten opnemen.

¹⁾ Dit soort lager vindt men in de literatuur voor het eerst vermeld bij R. T. P. Whipple, rapport T/R 622, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, herzien oktober 1958.

B8. Een volkomen afdichting voor zuigers en bewegende stangen, door J. A. Rietdijk.

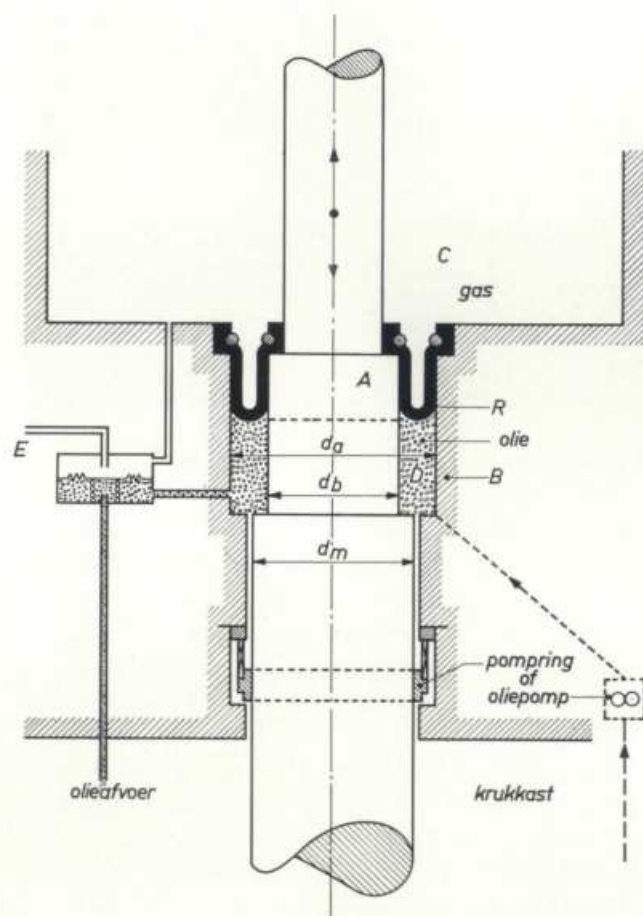
Er wordt een kort overzicht gegeven van de gebruikelijke afdichtingen voor zuigers en axiaal bewegende stangen (zuigerveer, O-ring, smalle spleet). Deze afdichtingen moeten aan de volgende eisen voldoen:

- a) Er mag geen gas uit de cilinder lekken.
- b) Er mag geen olie in de cilinder komen.
- c) De zuiger of de stang moeten voldoende gesmeerd worden.

De bovengenoemde conventionele methodes vormen een compromis tussen deze eisen en kunnen slechts worden betiteld als „middelen ter beperking van de lek”.

In de Philips-Stirling-machines worden zware eisen aan de afdichtingen gesteld. We hebben nu een nieuwe methode ontwikkeld die volledig aan de bovengenoemde voorwaarden voldoet. Bij deze methode (zie figuur) fungeert een rolmembraan *R*, dat zowel aan de stang of zuiger *A* als aan de cilinder *B* is bevestigd, als afdichtend element. Rolmembranen kunnen echter geen hoge drukken of drukvariatiën weerstaan. Deze moeilijkheid is opgelost door het membraan door olie in de ruimte *D* te ondersteunen. De olie voor deze ruimte wordt uit de krukast aangevoerd door middel van een kleine oliepomp of door een pompring. De diameters d_a , d_b en d_m zijn zo gekozen dat het volume van *D* tijdens de gehele slag van *A* constant blijft. Tussen de drukken in *C* en *D* wordt een constant verschil gehandhaafd door middel van de regel- en veiligheidsklep *E*. In de praktijk is $d_a - d_b$ van de orde van 4 mm.

Het principe wordt door een eenvoudig experi-



ment toegelicht. De ervaringen, met deze nieuwe af dichtingsmethode opgedaan, worden besproken: er zijn levensduren gerealiseerd van meer dan 10 000 uren bij 1500 omw/min, een slag van 65 mm en gasdrukken tot 100 atm.

Enkele, nog in het experimentele stadium verkerende, toepassingen worden vermeld. De membranen worden in eenvoudige persmallen vervaardigd. Het gebruikte materiaal is een speciale polyurethaanrubber.

B9. Regeneratoren voor Stirling-machines, door G. Vonk.

De regenerator is een van de belangrijkste onderdelen van machines die op de Stirling-cyclus berusten. In deze cyclus stroomt gas heen en weer tussen twee ruimten die verschillende temperaturen hebben. Teneinde het warmtetransport ten gevolge van deze wisselende gasstroom te beperken, wordt de regenerator als een warmtebarrière tussen de twee ruimten aangebracht.

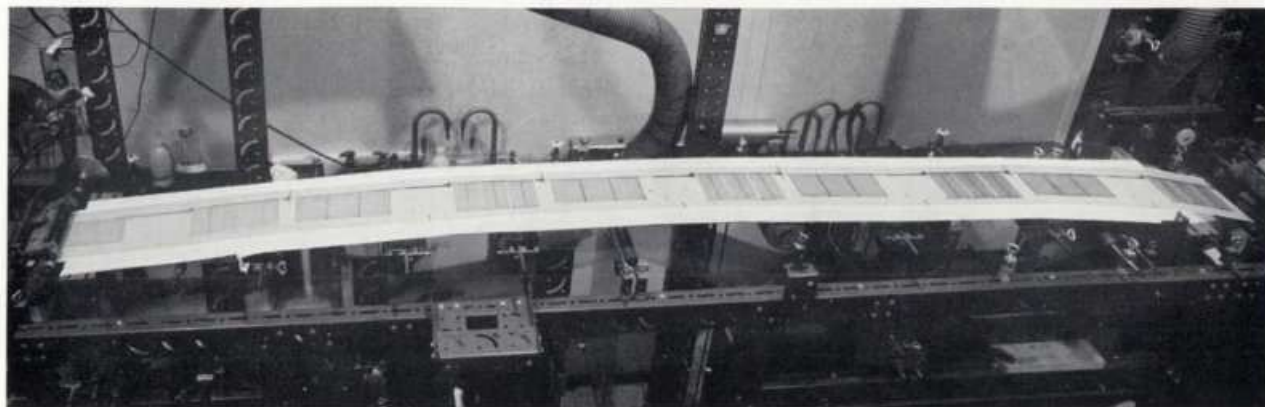
Na een uiteenzetting over het regeneratieproces wordt de grote invloed van de regeneratorverliezen in de Philips vloeibare-luchtmaschine besproken; een regeneratorverlies van slechts 1% heeft een verlies van ca. 20% in koelvermogen ten gevolge.

Met het oog op het belang van de regenerator worden aan regeneratoren uitvoerige onderzoeken verricht. Tijdens deze onderzoeken is een speciale machine voor het meten van regeneratoren ontwikkeld. Deze machine is buitengewoon nuttig gebleken bij het opsporen van de wetmatigheden die het regeneratieproces beheersen, en bij het bepalen van de eigenschappen van nieuw ontworpen vormen voor regeneratoren. Enkele resultaten worden besproken, waarbij speciale aandacht wordt besteed aan de plaatselijke mate van evenwicht tussen de heen- en teruggaande gasstroom. Onze proeven blijken tot verrassende conclusies betreffende dit evenwicht te leiden.

B10. Het P.D.-procédé: een nieuw fotografisch hulpmiddel in de elektronentechniek, door H. Jonker en C. J. Dippel.

Het P.D.-procédé berust op de toepassing van een molecuair-dispers lichtgevoelig systeem, dat een tussenpositie inneemt tussen het vrij prijzige zilverhalogenide-procédé en het relatief goedkope diazotypie-procédé. Na de belichting worden metallische kiemen geïntroduceerd door middel van een speciale kiemvormingsreactie, en het resulterende latente beeld wordt selectief versterkt tot een zichtbaar metallisch beeld met behulp van de methode van de fysische ontwikkeling of door een van de zg. stroomloze („electroless”) methodes. Op deze wijze kunnen Ag, Hg, Au, Pt, Pd, Cu, Ni, en Co worden afgescheiden aan het oppervlak van latente beeldkiemen. Zichtbare kleurstofbeelden kunnen worden gevormd door toepassing van fysische kleurvormende ontwikkeling. In wezen zijn fysische ontwikkelaars thermodynamisch onstabiele oplossingen, die aanleiding geven tot spontane (niet-selectieve) metaalafscheiding. Wij zijn er in geslaagd deze spontane ontleding aanzienlijk te vertragen door aan de ontwikkelaars een kleine hoeveelheid van een ionogene oppervlakteactieve stof (bij voorkeur een kationactieve stof) toe te voegen. Bovendien zijn wij nu in staat, door gebruik te maken van een reversibel redoxkoppel (ferro/ferri) in combinatie met een stabiliserende oppervlakteactieve stof, fysische ontwikkelaars samen te stellen die men 3 maanden kan bewaren en die toch een latent beeld in 1 minuut kunnen ontwikkelen, terwijl anderzijds voldoende stabiele ultrasnelle oplossingen kunnen worden bereid die dit zelfs in 1 seconde kunnen doen.

Bij een speciale uitvoeringsvorm van het P.D.-procédé zijn eigenschappen verkregen die deze werkwijze bijzonder aantrekkelijk maken als fotografisch hulpmiddel in de elektronentechniek. De belangrijkste van deze eigenschappen zijn:



- a) Buitengewoon groot contrast tussen gezwarte en transparante gebieden: gamma ca. 10, maximale zwarting > 3 .
- b) Zeer groot scheidend vermogen: 1000 lijnen per mm kunnen gemakkelijk worden gescheiden.
- c) Uitzonderlijk grote scherpste („acuïty”); rand-scherpte van maximale tot minimale doorlating $< 1 \mu\text{m}$. De 20ste generatie van een 100-voudige (lineaire) verkleining van een boekpagina op P.D.-film is nog leesbaar.
- d) De mogelijkheid om een grote verscheidenheid van flexibele en stugge materialen te bedekken met uitwendige (hechtende, afstroopbare of overbrengbare) patronen, waarvan de dimensies tot $\pm 0,5 \mu\text{m}$ nauwkeurig kunnen zijn en die dan diktes van 300-2000 Å en elektrische weerstanden van 200-1 ohm per vierkant vertonen.

De eigenschappen (a)-(c) zijn van groot belang voor het maken van micro-fotomaskers, die nodig zijn bij de fotofabricage (fabricage onder toepassing van fotografische technieken) van elektronische schakелеlementen en micro-elektronische schakelingen, b.v. dunne-film- en vastestofschakelingen. Ze zijn eveneens van belang wanneer het gaat om de vervaardiging van precisieschaaltjes e.d. en van microreproducties („microforms”) voor de opslag van informatie; de opslagcapaciteit van P.D.-film is 10^8 bits per cm^2 .

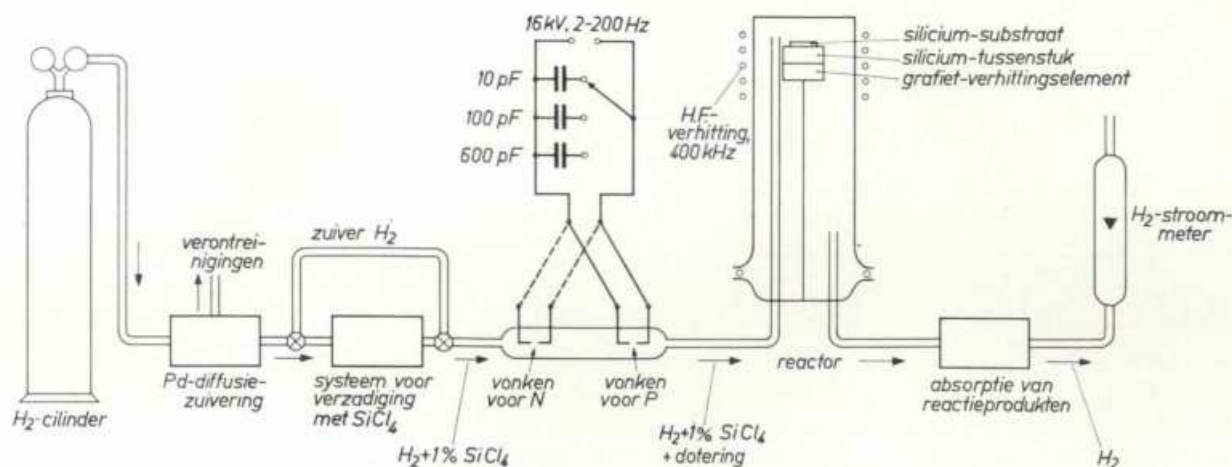
Dank zij eigenschap (d) heeft het P.D.-procédé geheel nieuwe, belangwekkende mogelijkheden aan bovenbedoelde fotofabricagemethodes toegevoegd, daar het in een aantal gevallen de toepassing van zg. fotoreserveringsmethodes (lichtgevoelige „resists”) overbodig maakt. Immers, elektrisch geleidende patronen die volgens de P.D.-werkwijze zijn vervaardigd, kunnen worden gebruikt als basis waarop selectief langs galvanische weg, door chemische reductie, door elektrochemische omwisseling, dan wel door elektroforetische bedekking, metallisch, halfgeleidend of isolerend materiaal kan worden afgescheiden. Deze werkwijze (die P.D.-photoplatting

wordt genoemd) kan worden toegepast b.v. voor de vervaardiging van micro-metaalmaskers voor opdampprocedés, fijne metaalgaasjes voor televisie-opneembuizen, flexibele gedrukte bedrading en afschermingen, en gedrukte onderdelen. Het procédé kan heel goed continu worden uitgevoerd, hetgeen met de eerder genoemde fotoreserveringsmethodes zeer veel moeilijker is te realiseren. Wij hebben experimentele machines gebouwd voor het continu aanbrengen van beelden en het verkoperen van deze beelden. Op deze machines wordt thans de proefproductie van flexibele afschermingen voor televisie-opneembuizen (zie foto) en van flexibele bedrading uitgevoerd.

B11. Het doteren van epitactisch groeiend silicium met behulp van vonken, door J. Goorissen, H. G. Bruijning en M. Knobbe.

Voor het gedoseerd toevoegen van verontreinigingen (doteren) tijdens epitactische groei van silicium is een eenvoudige techniek gevonden, die berust op de neiging van een mengsel van silicium-tetrachloride en waterstof om onder geschikte omstandigheden met de meestal gebruikte verontreinigings-elementen te reageren. Deze omstandigheden worden verkregen in een vonkontlading: hierin ontstaan ionen en radicalen, die ten gevolge van de warmteontwikkeling gemakkelijk met het elektrode-materiaal reageren. Het toevoegen van de verontreinigingen wordt derhalve tot stand gebracht door in het mengsel van halogenides en waterstof vonken te doen overspringen tussen elektrodes die geheel of gedeeltelijk uit het verontreinigings-element bestaan (zie de figuur). Nauwkeurige dotering is mogelijk door de frequentie van de vonken te regelen, hetgeen de methode zeer flexibel maakt. De hoeveelheid verbinding van de verontreiniging die per vonk wordt gevormd, hangt af van het elektrodemateriaal en van de energiedissipatie per vonk.

Reproduceerbare resultaten zijn verkregen met LaB_6 en met silicium plus 0,1% fosfor als elektrode-



materialen, waarmee respectievelijk borium en fosfor kunnen worden toegevoegd. Voorlopige proeven gaven soortgelijke resultaten voor een overeenkomstig germaniumstelsel. In de voordracht worden experimentele bijzonderheden medegedeeld en resultaten besproken die bij het doteren van epitactisch silicium verkregen zijn.

B12. Opto-elektronische schakelingen, door J. G. van Santen.

Opto-elektronische schakelingen die bestaan uit een combinatie van fotogeleders en gasontladingsbuizen, of van fotogeleders en gloeilampen, hebben reeds praktische toepassing gevonden b.v. in telefooncentrales, bij het aflezen van tellers en in digitale voltmeters. Een groot voordeel van dit soort schakelingen is dat er twee soorten signaalvermogen in aanwezig zijn, zodat overspreken gemakkelijk kan worden vermeden.

Opto-elektronische schakelingen die bestaan uit elektroluminescerende (e.l.) en fotogeleidende (p.c., van photoconduction) elementen, hebben nog enkele voordelen extra. Enkele hiervan zijn:

- 1) E.l.- en p.c.-lagen zijn zeer geschikt voor de constructie van geïntegreerde schakelingen.
- 2) De schakelingen kunnen zeer compact worden gebouwd.
- 3) De warmteontwikkeling kan gering zijn.
- 4) Ze zijn goedkoop.

Een geïntegreerde e.l.-p.c.-schakeling bestaat uit twee platen waarvan de ene de e.l.-elementen en de andere de p.c.-elementen bevat. De e.l.-onderlaag bestaat uit een glazen plaat met een elektrodesysteem. Op dit elektrodesysteem is een e.l.-laag in glasemail gesinterd en op de e.l.-laag is een doorzichtige geleidende tinoxydelaag gespoten. De p.c.-onderlaag bestaat uit een geëmailleerde keramische plaat met een elektrodesysteem. Hierop is een laag van het fotogeleidende materiaal gesinterd. Een goede lichtkoppeling tussen de e.l.- en p.c.-lagen wordt

verkregen door de e.l.- onmiddellijk boven op de p.c.-laag aan te brengen, waarbij de tinoxydelaag op de p.c.-laag komt te liggen. Tussen de twee lagen wordt een dun masker gelegd om kortsluitingen en ongewenste lichtkoppelingen te vermijden. De elektrodesystemen onder de e.l.- en p.c.-lagen, die deze lagen in een aantal discrete elementen verdelen, worden vervaardigd door volgens het „silkscreen” procédé een laklaag aan te brengen die goud bevat. In de voordracht worden de eigenschappen van opto-elektronische schakelingen besproken en enkele toepassingen gedemonstreerd.

B13. N-P-N-germaniumtransistors voor het UHF-gebied, door P. J. W. Jochems.

Bij de produktie van transistors voor hoge en zeer hoge frequenties worden verschillende methodes toegepast om, bij behoud van de reproduceerbaarheid, de basis zeer dun en de afstand tussen emitter en basiscontact zeer klein te maken — een en ander om zo klein mogelijke capaciteiten en weerstanden te krijgen. De afstand tussen basiscontact en emittergebied van zulke transistoren wordt in het algemeen bepaald door de afmetingen van mallen of fotomaskers, die bij de vervaardiging worden gebruikt; men komt daarbij tot afstanden van minstens enkele microns.

Voor de fabricage door dubbele diffusie van een N-P-N-germaniumtransistor voor het UHF-gebied is nu een nieuwe techniek ontwikkeld, die ons in staat stelt de afstand tussen de emitter en het basiscontact kleiner dan 1 micron te maken. Deze afstand wordt verkregen zonder mechanische hulpmiddelen, doch uitsluitend door een behandeling volgens een bepaald temperatuur-tijdprogramma.

Transistors die met deze techniek zijn vervaardigd, kunnen b.v. een vermogensversterking van 10-12 dB en een ruisgetal van 6 dB bij 800 MHz hebben. Verbindt men deze techniek met fotolithografische methodes, dan kan de spreiding van deze getallen zeer klein worden gehouden.

GROEP C, SYSTEMEN EN METINGEN

C1. Een rekenmachine met magnetische ringen, door H. J. Heyn.

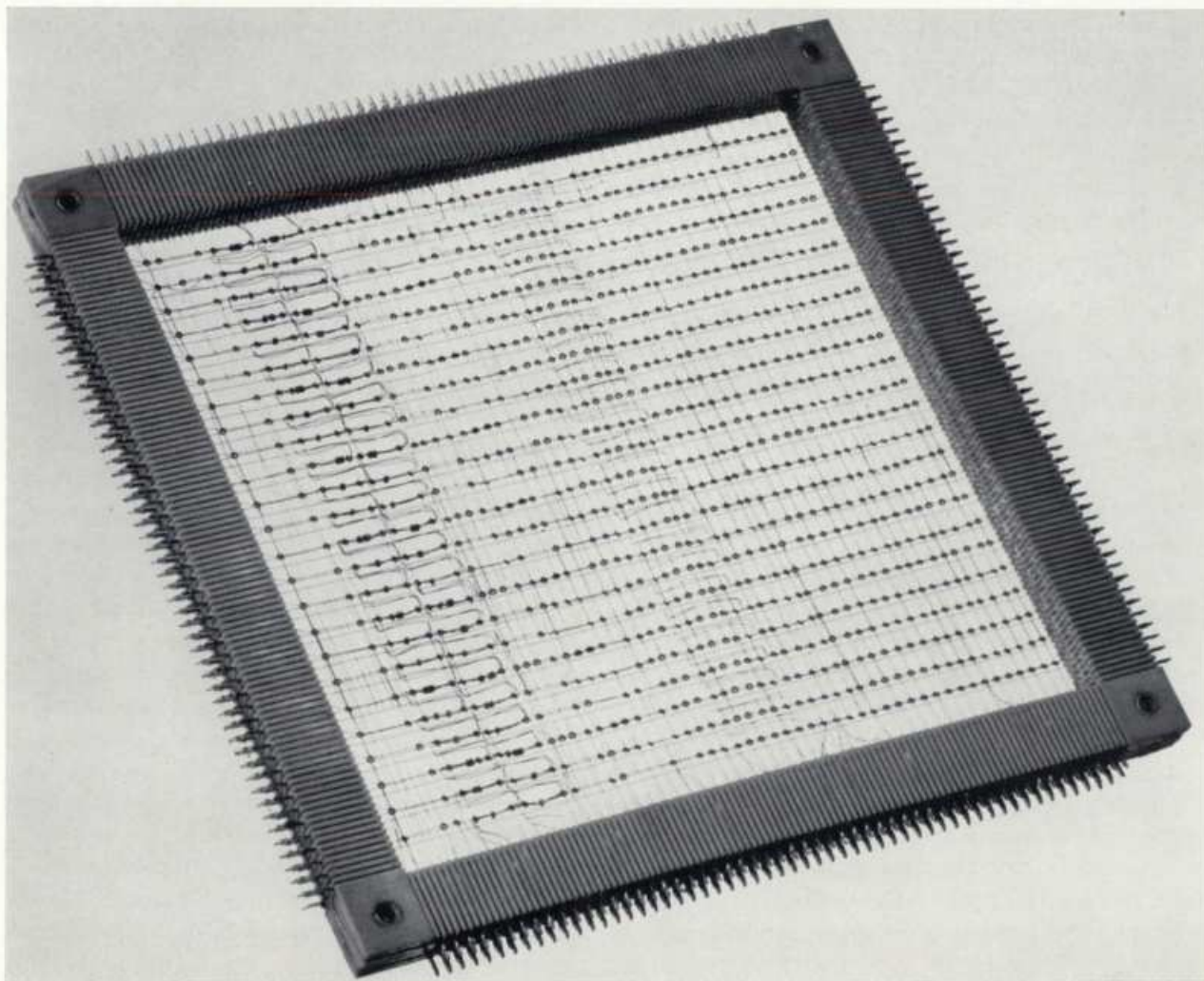
Een rekenmachine wordt beschreven die een flexibel micro-programma bezit en waarin behalve voor het geheugen ook voor de logicaschakelingen gebruik is gemaakt van magnetische ringen. De grondgedachte is een uitbreiding van de mogelijkheden van een woord-georganiseerd ringengeheugen. Door geschikte keuze van de bedrading der registers is het mogelijk micro-operaties, zoals „schuif rechts”, „schuif links” en „vorm het één-complement”, eenvoudig te realiseren. Ook kunnen verscheidene registers tegelijkertijd worden uitgelezen, waardoor hun uitgangsspanningsimpulsen lineair worden gecombineerd. Op deze manier is het met behulp van niet-lineaire versterkers mogelijk drempellogicafuncties te maken. De registers worden bestuurd door een microprogramma dat is vastgelegd in een woord-georganiseerd ringengeheugen. Men kan zorgen dat de informatie hierin blijvend wordt onthouden, door kleine permanente magneten op de ringen te plaatsen.

Het voornaamste doel was, een goedkope, robuuste en flexibele rekenmachine te maken. Vanwege het feit dat iedere micro-operatie een complete geheugencyclus kost, terwijl iedere macro-operatie is opgebouwd uit verscheidene micro-operaties, is de rekenmachine niet zeer snel. B.v. kost het optellen van twee getallen van 42 binaire cijfers gemiddeld 10 geheugencycli. Hierin is dan niet begrepen de tijd nodig voor het selecteren van de getallen en van de instructie uit het geheugen. In een laboratorium-model (zie de foto), waarin ringen van het type 6C1 zijn gebruikt, is een lees-schrijf-cyclustijd bereikt van $2,5 \mu\text{s}$.

Het lijkt goed mogelijk dezelfde ideeën toe te passen op b.v. magnetische filmgeheugens.

C2. Bewegingsterugkoppeling in luidsprekers, door J. A. Klaassen en S. de Koning.

Ter oplossing van de problemen die voortkomen uit het niet-lineaire en frequentie-afhankelijke gedrag van luidsprekers met bewegende spoel ligt het



voor de hand te trachten het principe van de terugkoppeling toe te passen, waarvan zo vaak gebruik wordt gemaakt voor het verminderen van lineaire en niet-lineaire vervorming in elektrische systemen. Om een dergelijke „bewegingsterugkoppeling” te realiseren, moet men beschikken over een elektrisch signaal dat een getrouw beeld is van de mechanische conusbeweging. In principe kan men dit op verschillende manieren verkrijgen. Alle manieren echter hebben in de praktijk hun specifieke moeilijkheden. Er is nu een methode gevonden die betrekkelijk gemakkelijk realiseerbaar schijnt. Deze berust op een meting van de conusversnelling door middel van een piëzo-elektrisch element waarop uitsluitend traagheidskrachten werken. Bewegingsterugkoppeling vermindert niet alleen de vervorming, maar verschaft ook een goed middel om de eigenschappen van een luidspreker te wijzigen en deze bij allerlei gewenste toepassingen aan te passen. Hierbij kan genoemd worden het construeren van luidsprekers voor gebruik in kleine kasten. De verbeteringen die men bij een luidspreker met bewegende spoel door bewegingsterugkoppeling kan verkrijgen, zijn van nature tot het lage frequentiegebied beperkt.

C3. Het opwekken van „natuurlijke” muzieklanken met elektronische middelen, door N. V. Franssen.

De meeste elektronische muziekinstrumenten brengen hun klanken voort door het schakelen van wisselstroomsignalen. De conventionele muziekinstrumenten daarentegen kunnen globaal in twee categorieën worden verdeeld: ten eerste instrumenten waarbij energie in de vorm van impulsen wordt toegevoerd aan filterelementen (slagwerk, piano), en ten tweede instrumenten waarbij een constante energiestroom wordt geschakeld en door middel van genererende elementen in klank wordt omgezet (viool, blaasinstrumenten). Wil men elektronische instrumenten volgens laatstgenoemde principes ontwerpen, dan blijken echter ingewikkelder methodes nodig te zijn om een „natuurlijk” klinkend resultaat te verkrijgen. Hierbij blijken van speciaal belang te zijn een regelbare instabiliteit van de generatoren en gedifferentieerde vormen van de inzet der trillingen.

C4. Metrologische toepassing van buigingsrasters, door H. de Lang.

Het principe van het meten van verplaatsingen met behulp van buigingsrasters wordt besproken en gedemonstreerd. In het bijzonder wordt een optische foto-elektrische methode voor het aftasten van rasters beschreven, die gebruik maakt van een optisch systeem met vergroting — 1 met zeer kleine

aberraties en die als uitgangssignalen twee sinusvormige foto-elektrische spanningen met een stabiel fazeverschil van 90° levert. Om wisselstroomkoppeling mogelijk te maken, is aan beide signalen een met de tijd harmonisch verlopende fazemodulatie gegeven. Met deze methode is een snelle digitale naar richting bepaalde meting van een verplaatsing in stappen van 1 micron mogelijk. Een werkend model van zulk een aftastapparaat wordt vertoond.

Bovendien wordt een methode beschreven en gedemonstreerd waarmee uiterst kleine translaties of rotaties kunnen worden aangetoond en waarbij één fazegemoduleerd signaal wordt gebruikt.

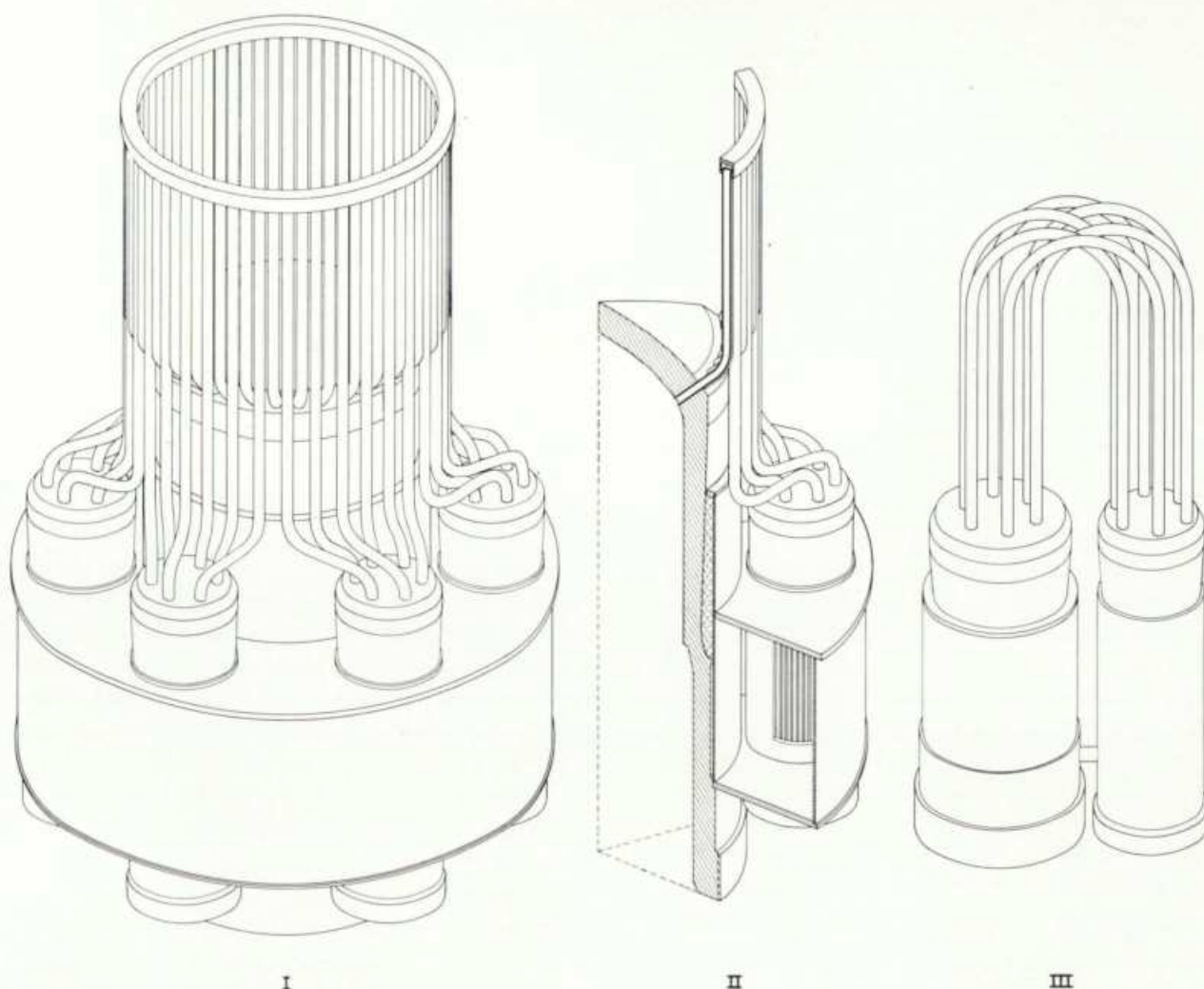
C5. Experimenten over heetgasmotoren van groot vermogen, door R. A. J. O. van Witteveen.

De heteluchtmotor is in 1816 door de Schot Stirling uitgevonden, doch heeft alleen in de 19de eeuw enkele praktische toepassingen gevonden. In de afgelopen jaren zijn er in de Philipslaboratoria uitvoerige onderzoeken over het Stirling-proces gedaan en dank zij het gebruik van moderne materialen en een betere kennis van de verschijnselen van stroming en warmte-overdracht kan het Stirling-proces thans met een zeer hoog rendement worden gerealiseerd.

Na een korte uiteenzetting over de grondslagen van het Stirling-proces en over de constructie van de heetgasmotor worden enkele problemen aangestipt die samenhangen met het ontwerpen van motoren voor groot vermogen.

In 1957 werd reeds een totaal rendement van 38% bereikt bij een éencilindermotor van 30 pk. Met behulp van een elektronische rekenmachine worden nu de ongeveer 20 onafhankelijke constructie-parameters geoptimaliseerd om tot nog betere resultaten te komen. Voor grote en zeer grote motoren wordt een rendement van 40% tot 45% verwacht.

Tot nu toe zijn motoren gebouwd met vermogens tot 80 pk per cilinder. Het vermogen is echter geenszins tot deze waarde beperkt, en voor de naaste toekomst bestaan plannen voor een vermogen van 400 pk per cilinder. Natuurlijk vereist het ontwerp van zulk een motor een vergaande extrapolatie van de tegenwoordige theorie — waarop ook de eerdergenoemde optimalisatie berust. Hierdoor zou men voor onverwachte storende effecten kunnen komen te staan; er is derhalve verder experimenteel onderzoek over een motor van deze grootte vereist. Dit zou echter wegens de grote afmetingen van de machines veel geld en tijd kosten. Het is derhalve gewenst over een soort model te beschikken, dat eenvoudiger te maken is, gemakkelijker te wijzigen en



- I Bovengedeelte van een 400-pk-motor, waarin men de cirkelsymmetrie ziet; de krukast is weggelaten.
 II Uitgesneden sector, die $\frac{1}{6}$ gedeelte van de machine omvat.
 III De „deelmotor” wordt verkregen door het sectorvormige cilindergedeelte tot een cilinder met $\frac{1}{6}$ van het oorspronkelijke slagvolume om te vormen en de inwendige configuratie voor het stromende gas onveranderd te houden. De verschijnselen in het gascircuit van de „deelmotor” zullen dezelfde zijn als in de oorspronkelijke 400-pk-motor.

vooral goed geschikt voor het uitvoeren van nauwkeurige metingen. Natuurlijk moet het thermodynamisch gedrag van dit model indientiek zijn aan dat van de motor zelf. Gelukkig biedt de heetgasmotor de mogelijkheid voor zulk een bijzonder soort model dank zij zijn cirkelsymmetrische opbouw. Dit model, de zg. „deelmotor” (zie illustratie) wordt toegelicht en gedemonstreerd.

C6. Elektronische precisie en tolerantie van onderdelen, door J. J. Zaalberg van Zelst.

Er bestaat een discrepantie tussen de tolerantie van onderdelen, speciaal de actieve, en de precisie die in de elektronentechniek vaak wordt geëist. Desondanks kan in vele gevallen de vereiste nauwkeurigheid worden verkregen, zelfs zonder digitale methodes te gebruiken, door toepassing van stabiliseringsprincipes of door een minder voor de hand liggend

gebruik van de onderdelen. Enige van deze werkwijzen en hun fundamentele beperkingen worden in het kort besproken, en hun mogelijkheden worden door enkele voorbeelden geïllustreerd.

C7. Numerieke verwerking van meetresultaten, door N. F. Verster.

De verwerking van meetresultaten met behulp van een rekenmachine kan vervelend routinewerk uitsparen, vooral als de metingen rechtstreeks op band of op ponskaarten zijn geregistreerd. Voor dit blindelings manipuleren met de getallen zijn echter speciale maatregelen nodig. In deze voordracht worden numerieke methodes beschreven die men kan toepassen om uitschieters in de metingen en afwijkingen van het verwachte gedrag te doen ontdekken, mits de metingen redundant zijn.

C8. Meetopstellingen en golfgeleiders in het millimeter-golfgebied, door M. Gevers.

Gedurende de laatste vijf jaar zijn talrijke microgolfonderdelen en meetinstrumenten voor 4-mm- en 2-mm-golven in ons laboratorium ontwikkeld. Om de realiseerbaarheid van een nieuw soort onderdeel te toetsen, wordt dit gewoonlijk eerst voor gebruik bij 3-cm-golven ontworpen, waarvoor de nodige meetinstallaties gemakkelijk beschikbaar zijn en de mechanische toleranties geen grote moeilijkheden opleveren. Om de bruikbaarheid van de ten slotte verkregen onderdelen voor millimetergolven te beoordelen, zijn echter directe metingen van hun eigenschappen bij de millimetergolffrequenties noodzakelijk. De voor dit doel beschikbare hulpmiddelen zijn onlangs nog aangevuld met een impedantieschrijver waarbij de frequentie automatisch wordt gevarieerd in een gebied tussen 72 en 77 GHz (zie voordracht no. C9).

In het centimetergolfgebied brengt het gebruik van de conventionele holle metallische golfgeleiders generlei moeilijkheden mee en deze worden dan ook op grote schaal toegepast. Voor sub-mm-golven echter zijn transmissielijnen van dit soort moeilijk met redelijke nauwkeurigheid te vervaardigen en hebben zij een te grote demping. In dit laboratorium zijn andere soorten transmissielijnen zoals diëlektrische lijnen, beeldlijnen en quasi-optische transmissielijnen bij 4 mm golflengte onderzocht met het oog op hun eventuele toepasbaarheid voor sub-mm-golven. Het gebruik van deze minder conventionele transmissielijnen wordt toegelicht door een demonstratie waarbij enkele optische verschijnselen, die in principe wel bekend zijn, veel eenvoudiger zichtbaar kunnen worden gemaakt dan met normale optische instrumenten (zie voordracht no. C10).

C9. Een polaire impedantieschrijver met automatische variatie van de frequentie van 72-77 GHz, door F. C. de Ronde.

Er is een impedantieschrijver voor het millimetergolfgebied geconstrueerd die de impedantie als functie van de frequentie direct zichtbaar maakt op een oscilloscoop. De frequentie kan automatisch gevarieerd worden van 72-77 GHz. Bovendien kan men verschijnselen volgen die slechts enkele microseconden of nog korter duren. Het toestel maakt gebruik van de welbekende methode met vier sondes. In plaats van een elektrische koppeling door sondes wordt een koppeling met een golfgeleideraftakking voorzien van een $\frac{1}{4}\lambda$ -transformator toegepast. Op deze wijze kon een vrij eenvoudig en stabiel onderdeel worden

gemaakt, dat bredebanddetectoren met onderling identieke frequentiekenarakteristieken bevat.

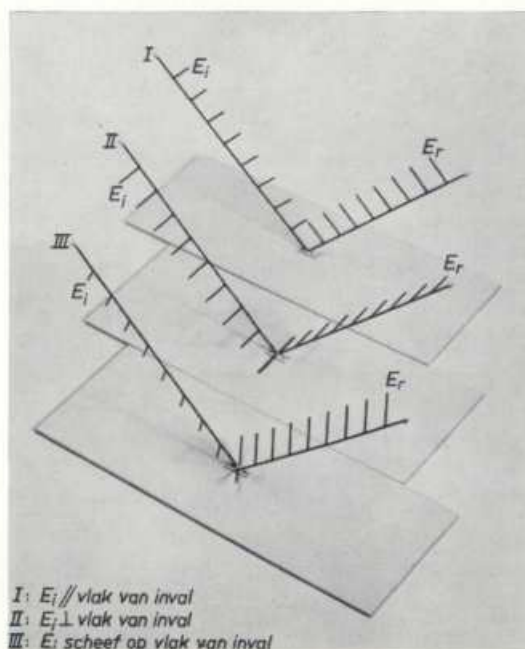
Een bredebanddetector is als niveauregelaar gebruikt, om het uitgangssignaal van de oscillator met variabele frequentie (een C.S.F. „Carcinotron”), gezien vanuit de andere detectoren, onafhankelijk van de frequentie te maken.

Een ont koppeling tussen de belasting en de variërende oscillator is verkregen door een bredebandverzwakker van 25 dB.

C10. Demonstraties van het optische gedrag van 4-mm-golven, door A. G. van Nie.

Enkele optische verschijnselen bij een golflengte van 4,2 mm worden gedemonstreerd. Met behulp van een hoorn en een lens wordt een bundel gevormd. De vertoonde verschijnselen zijn:

- 1) De polarisatierichting van de bundel kan door reflexie aan een metalen spiegel worden veranderd. Deze verandering van de polarisatierichting wordt veroorzaakt doordat de tangentiële component van het elektrische veld aan het oppervlak een fazesprong gelijk aan π radialen ondergaat. (Drie gevallen worden door de modellen in de foto geïllustreerd.)



Reflexie van een gepolariseerde microgolf aan een ideale metallische spiegel. E_i en E_r zijn resp. de elektrische vector van de invallende en van de gereflecteerde golf.

- 2) In het geval van totale reflexie aan het grensvlak tussen twee diëlektrica — waarvan er in ons geval één lucht is — bestaat er achter het grensvlak een golf die exponentieel afneemt. Storingen in deze golf, die b.v. met behulp van een ander diëlektricum teweeg gebracht kunnen

worden, hebben veranderingen in de gereflecteerde golf ten gevolge.

- 3) Valt er een vlakke golf op een lens, dan treedt in geval van diffractie van de bundel de grootste intensiteit niet op in het brandvlak, doch in een vlak dat dichterbij de lens is gelegen.

C11. Compatibele eenzijdbandmodulatie, door Th. J. van Kessel.

Eenzijdbandmodulatie (EZB) heeft enkele voordelen ten opzichte van amplitudemodulatie (AM), waarbij twee zijbanden worden gebruikt: de bandbreedte is slechts half zo groot als die van AM, waardoor EZB bij een zelfde zendvermogen een betere signaal-ruisverhouding levert. Een nadeel van EZB is dat de omhullende van het signaal vervormd is, zodat de demodulatie aanzienlijk ingewikkelder is dan in het geval van AM, waar een piekdetecteur — de omroepontvanger — kan worden gebruikt.

Het blijkt mogelijk te zijn de voordelen van AM en EZB in één systeem te verenigen dat compatibel is met het gebruik van normale omroepontvangers. Dit soort modulatie wordt als compatibele eenzijdbandmodulatie (CEZB) aangeduid. Het CEZB-systeem dat in deze voordracht wordt beschreven, berust op het kwadrateren van een EZB-signaal met volledige draaggolf en op onderdrukking van alle frequentiecomponenten behalve die rondom de dubbele draaggolffrequentie. Bij deze methode heeft voor het overgaan van AM- op CEZB-uitzendingen slechts een eenvoudig apparaat aan de zenzijde te worden toegevoegd.

C12. Continue deltamodulatie, door F. de Jager en J. A. Greefkes.

Bij deltamodulatie wordt het uit te zenden signaal omgezet in een reeks impulsen 1 en 0. Bij de ontvangst worden deze signalen toegevoerd aan een integrerend netwerk en een laag doorlatend filter, zodanig dat een benadering van het oorspronkelijke ingangssignaal kan worden verkregen. Om de juiste opeenvolging van de impulsen aan de zenzijde te verkrijgen, wordt hier een hulpontvanger gebruikt, en het verschil tussen het ingangssignaal en het benaderende signaal bepaalt of de volgende impuls een 1 of een 0 zal zijn. Men heeft aldus een terugkoppellus, waarin de opgewekte impulsen in tijd en in amplitude worden „gekwantiseerd”.

Bij alle systemen waarin continue informatiesignalen in een reeks van binaire impulsen worden gecodeerd, moet het ingangssignaal een bepaald

niveau hebben. Anders treedt er of overbelasting op, of de vervorming die door het proces van de kwantisering ontstaat wordt te groot ten opzichte van de signaalamplitude. Het doel van de „continue deltamodulatie” is nu het verkrijgen van een automatische aanpassing van de kwantiseringsstrappen aan het (willekeurige) niveau van het ingangssignaal.

Te dien einde wordt aan de zenzijde een spanning afgeleid die aan het niveau van het signaal beantwoordt, en de informatie van deze spanning wordt eveneens door middel van de opgewekte impulsreeks naar de ontvanger overgebracht. In feite kan de keten van de deltamodulatie zelf voor dit doel worden gebruikt, door in de terugkoppellus een modulator extra aan te brengen. Het systeem wordt zo ingesteld dat voor zwakke ingangssignalen gemiddeld $\frac{1}{3}$ van het aantal uitgezonden impulsen een 1 is, terwijl voor ingangssignalen met grote amplitude de verhouding tussen het gemiddelde aantal impulsen 1 en impulsen 0 geleidelijk verandert, zodanig dat bij een verandering van 30 dB in het niveau het ingangssignaal een verandering in de verhouding van de gemiddelde aantallen van de beide impulsen van $\frac{1}{3}$ tot $\frac{2}{3}$ resulteert. Van deze verandering in de opgewekte impulsreeks wordt een signaal afgeleid dat wordt gebruikt voor het regelen van de grootte van de kwantiseringsstrappen in zender en ontvanger.

Daar dit regelmechanisme gelijktijdig in zender en ontvanger werkzaam is, blijft de totale karakteristiek ten alle tijde lineair. Op deze wijze is de kwantiseringsruis vrijwel evenredig met de amplitude van het informatiesignaal gemaakt, hetgeen het mogelijk maakt het proces van de codering op een veel groter gebied van informatiesignalen toe te passen. Dit wordt aangetoond door experimenten die het verschil tussen normale deltamodulatie en continue deltamodulatie demonstreren.

C13. Deltamodulatie voor het overbrengen van videosignalen, door J. C. Balder.

Er wordt een methode beschreven die het mogelijk maakt videosignalen over te brengen door middel van de speciale vorm van impulscode-modulatie die men deltamodulatie noemt. Twee tunneldiodes in balansschakeling worden gebruikt om het videosignaal in een binair signaal om te zetten. Met een systeem dat bestaat uit twee tunneldiodes, een spoel en verschillende weerstanden, is bij bedrijf met een impulsherhalingsfrequentie van 100 MHz een signaal-kwantiseringsruisverhouding van 42 dB verkregen. Een voordeel ten opzichte van het normale impulscode-modulatiesysteem is de eenvoud van de vereiste apparatuur. Ook moet men bij impulscode-

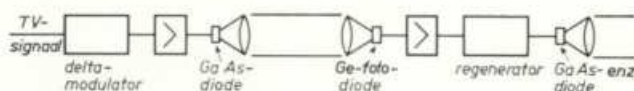
modulatie vrij grote impulsherhalingsfrequenties toepassen teneinde isofoten te vermijden. Bij het systeem met deltamodulatie worden geen isofoten zichtbaar, daar er geen vaste kwantisering-niveaus zijn. Met dit systeem kan een kleurenbeeld worden overgebracht dat vrijwel geen degradatie vertoont.

Het systeem zal worden toegepast ter vermindering van de cumulerende werking van storingen in communicatiesystemen die talrijke schakels bevatten, zoals b.v. optische systemen of systemen die ronde golfpijpen met de trillingswijze TE_{01} gebruiken.

C14. Overbrenging van deltagemoduleerde televisiesignalen in het infrarood, door C. Kramer.

Er wordt een systeem beschreven (zie de figuur) waarbij het uitgangssignaal van een deltamodulator met tunneldiodes (zie voordracht no. C13) wordt gebruikt om de stroom door een licht uitzendende

GaAs-diode te moduleren. De diode wordt door een tweetal lenzen op een germaniumfotodiode afgebeeld die het infrarode licht detecteert dat de GaAs-diode uitzendt. Het gedetecteerde impulssignaal wordt dan geregenereerd en aan een tweede GaAs-diode toegevoerd, enz. Op deze wijze kan een signaal over veel grotere afstand worden overgebracht dan bij een lineair modulatiesysteem zoals AM of FM mogelijk zou zijn. Bij een klokfrequentie van 40 MHz van de deltamodulator, die een goede beeldkwaliteit verzekert, en bij een stroom van 100 mA door de GaAs-diode, blijkt de afstand tussen de relaisstations 500 m gemaakt te kunnen worden zonder merkbare achteruitgang van het signaal. Daar slechts één op de 10^{20} impulsen verkeerd zal worden ontvangen, kan een vrijwel onbeperkt aantal relaisstations worden gebruikt.



GROEP D, BIOCHEMIE EN PERCEPTIE

D1. Onderzoekingen aan een geïsoleerd enzym, door L. A. Æ. Sluyterman.

Zoals alle echte katalysatoren, versnellen ook enzymen niet alleen een reactie in de voorwaartse richting, doch ook de overeenkomstige terugwaartse reactie. Welke van beide reacties overheerst, wordt bepaald door de thermodynamische omstandigheden. Het produkt van de voorwaartse reactie zal daarom het substraat van de terugreactie zijn, en men moet verwachten, dat de wisselwerking tussen enzym en substraat in bepaalde opzichten overeen zal komen met die tussen enzym en produkt. Dit beginsel werd nagegaan met het proteïne-splitsende enzym papaïne, waarbij een eenvoudig synthetisch substraat en het corresponderende produkt werden gebruikt. Uit kinetische experimenten konden vijf punten van overeenkomst worden afgeleid. Deze worden hier besproken, waarbij tevens wordt nagegaan hoe de resultaten van nut kunnen zijn voor een diepergaand onderzoek naar de wisselwerking tussen een enzym en zijn substraat.

D2. Inactivering door straling en erfelijke transformatie van bacteriën, door J. H. Stuy.

Ultraviolette en ioniserende straling zijn dodelijk voor bacteriën, d.w.z. zij verhinderen hun onbegrensde vermenigvuldiging. Er zijn sterke aanwij-

zingen dat het vitale celonderdeel, dat door U.V. wordt beschadigd, het desoxyribonucleïnezuur (DNA) is; deze stof is de drager van de erfelijke eigenschappen van de cel. Om nader te kunnen aantonen in hoeverre inderdaad de vernietiging van DNA de doodsoorzaak van de bacterie is, en om de aard van de beschadiging aan het DNA-molecuul te kunnen nagaan, werd het verschijnsel van de bacterietransformatie te hulp geroepen. Dit verschijnsel houdt in, dat uit bepaalde cellen verkregen DNA erfelijke eigenschappen kan overdragen aan een andere cel. De transformerende eigenschappen van aan bestraalde cellen onttrokken DNA werden onderzocht en vergeleken met die van DNA dat in vitro was beschadigd, b.v. door stromingsafschuiving, ultrasone trillingen of door het enzym DNA-ase. Hierdoor kunnen enkele conclusies getrokken worden aangaande de relatieve mate waarin ketenbreuk en chemische ontleding van de basen medewerken bij het onwerkzaam maken van DNA door U.V. of ioniserende straling.

D3. De chloroplast als enzymesysteem, door J. S. C. Wessels.

Het bepalen van de biochemische functie van kenmerkende structuren in het cytoplasma vormt een gemeenschappelijk terrein voor de biochemie en de fysiologie, en door hun gezamenlijke bijdragen

wordt een beter inzicht verkregen in de aard van de celorganisatie en -stofwisseling. Chloroplasten komen in alle groene planten voor en zijn onontbeerlijk voor de fotosynthese. Zij wisselen in grootte, maar hebben gewoonlijk de vorm van schijven of platte ellipsoïden van gemiddeld 5 micron diameter. De chloroplasten bevatten alle chlorofyl en hulp-pigmenten die noodzakelijk zijn voor de absorptie van licht en de omzetting daarvan in chemische energie. Hun rol bij de primaire fotochemische reacties van de fotosynthese staat buiten twijfel. Om enig licht te doen schijnen op de nog open vragen aangaande de rol van chloroplasten bij de stofwisseling van de cel, is in dit laboratorium onderzoek verricht aan het mechanisme van de licht-reductie van biologische redoxsystemen en aan de fotofosforylering (d.w.z. de synthese van adenosinetrifosfaat onder de directe invloed van licht). Het vermogen van chloroplasten om deze reacties buiten de levende cel uit te voeren, ondersteunt de conclusie dat deze structuren moeten worden opgevat als zelfstandige eenheden in het celplasma, waarbinnen alle enzymsystemen welke voor de fotosynthese noodzakelijk zijn, zijn ondergebracht.

D4. Het Instituut voor Perceptie Onderzoek, door J. F. Schouten.

Het Instituut voor Perceptie Onderzoek, gesticht in 1957, is ontstaan uit een samenwerking tussen het Natuurkundig Laboratorium van de N.V. Philips en de Technische Hogeschool te Eindhoven.

Het werk van dit laboratorium bestaat uit wetenschappelijk onderzoek op het gebied van de menselijke „informatieve” cyclus, die de zintuiglijke waarneming, de verwerking van deze waarneming en de perceptieve arbeid omvat.

Enige actuele onderwerpen van onderzoek zijn:

- Zien:
- subjectieve helderheid in verband met retinale adaptatie,
 - visuele latentie,
 - pupilcontractie,
 - subjectieve stroboscopie.
- Horen:
- subjectieve geluidsanalyse,
 - toonhoogtegevaarwording (harmonische en quasi-harmonische geluiden).
- Fonetiek:
- relevante fysische parameters van fonemen en morfemen,
 - subjectieve spraakanalyse,
 - elektronische spraaksynthese.
- Perceptie en perceptieve arbeid:
- herkenning,
 - reactietijden,
 - industriële taken zoals: montage, besturing, inspectie, enz.

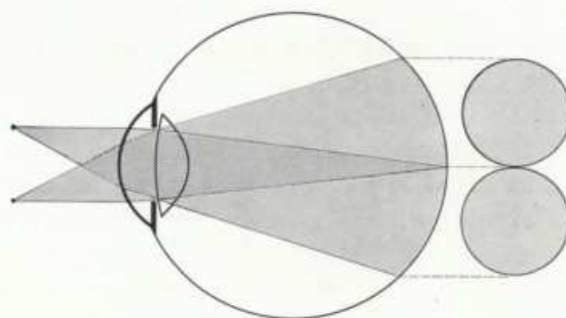
Ten behoeve van de bij het onderzoek noodzakelijke psychofysische metingen wordt grote aandacht besteed aan geschikte instrumentatie en in het bijzonder aan de automatisering van tijd-rovende en geestdodende werkzaamheden zoals het aflezen van meters en het verwerken van het waarnemingsmateriaal. Als voorbeeld moge de DONDERS, een systeem voor het meten van reactietijden en reactiekwaliteiten aan 20 proefpersonen, worden genoemd.

Het laboratorium houdt zich tevens bezig met problemen van de revalidatie. Enige hulpmiddelen voor blinden, doven en spastici zijn in ontwikkeling.

De werkzaamheden hebben een nauwe aansluiting bij de informatietheorie, de stuurkunde of cybernetica en de ergonomie.

D5. Meting van de spectrale afhankelijkheid van de pupilreactie met behulp van een entoptische methode, door H. Bouma.

Voor het meten van de grootte van de menselijke pupil staan verschillende methodes ter beschikking. In een beperkt toepassingsgebied biedt de subjectieve, entoptische methode enige voordelen. Deze methode, die berust op een tweevoudige projectie van de pupilrand op het netvlies (zie figuur), maakt een eenvoudige, snelle en nauwkeurige bepaling door de proefpersoon zelf van de statische of quasi-statische pupildiameter mogelijk. Bovendien worden eventuele spontane pupilfluctuaties direct door de proefpersoon onderkend.



Aangezien de proefpersoon deze metingen zelf doet, is de taak van de proefleider beperkt tot het verrichten van de noodzakelijke aflezingen. Deze omslachtige taak kan zeer wel door automatische apparatuur worden overgenomen. In de door ons gebezigde opstelling worden de waarden van continue en discontinue variabelen automatisch geregistreerd na het indrukken van één drukknop door de proefpersoon. In het algemeen leidt zulk een

automatische procedure tot een grote vereenvoudiging bij het vergaren van grote aantallen psychofysische meetgegevens.

De entoptische methode werd door ons toegepast teneinde de invloed van verschillende parameters van retinale belichting te bepalen. Wij beperken ons thans tot de invloed van de golflengte. In het algemeen is het gevoeligheidsspectrum van een reactie op licht bepaald door het absorptiespectrum van de betrokken retinale pigmenten. Het is bekend dat bij hoge verlichtingsniveaus (fotopisch zien, kegeltjesmechanisme) de maximale gevoeligheid van het menselijk oog bij 555 nm ligt. In de schemering echter (scotopisch zien, staafjesmechanisme) ligt dit maximum aanmerkelijk lager, bij 505 nm.

Het blijkt dat de statische pupilcontractie, ook onder fotopische condities, globaal de scotopische gevoeligheidscurve volgt. Onder fotopische condities worden helderheid en kleur bepaald door het kegeltjesmechanisme. De statische pupilcontractie echter wordt blijkbaar bepaald door het staafjesmechanisme.

D6. Eigenschappen van de toonhoogtegevaarwording bij korte tijdsduur, door B. Lopes Cardozo.

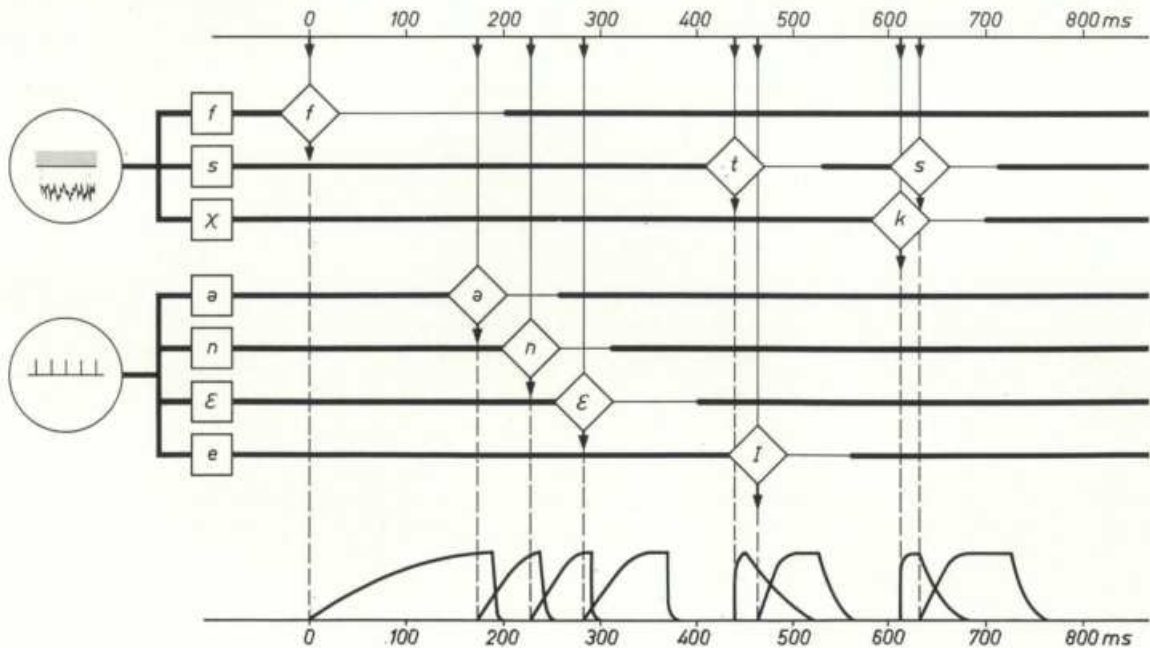
In een sinusvormig signaal van voldoende lange duur kan het oor een tonaal gedeelte en een tweetal tikken onderscheiden, welke laatste samenhangen met inzet en eind van de toon. Naarmate het sinussignaal korter wordt, wordt het tonaal deel zwakker en zwakker, terwijl de tikken de overhand krijgen.

Het is mogelijk om kwantitatieve gegevens over dit verschijnsel te verkrijgen door het juist waarneembare frequentieverschil te meten van twee tonen welke na elkaar worden gehoord. Een experiment van dit type zal worden getoond en besproken. Als resultaat van dergelijke proeven werd gevonden dat het juist waarneembare frequentieverschil ruwweg omgekeerd evenredig is met de toonduur. Deze betrekking geldt voor signalen korter dan ca. 60 ms en schijnt niet sterk afhankelijk te zijn van de frequentie van de gebruikte toon.

De mogelijke gevolgen van deze betrekking worden besproken in termen van de signaal-ruisverhouding van een hypothetisch model van het menselijk gehoor.

D7. Spraakperceptie, door A. Cohen.

Voor de analyse van spraak is, behalve de gangbare apparatuur die het fonetisch onderzoek ten dienste staat (zoals de oscillograaf en de spectrograaf), een elektronische poortschakeling gebruikt. Deze schakeling stelt de onderzoeker in staat perceptieve proeven te doen door een willekeurig stuk uit een spraaksignaal te isoleren en dit vervolgens als stimulus te gebruiken. Op deze wijze beschikt hij over de mogelijkheid analytisch te luisteren. Het blijkt nu mogelijk op grond van perceptieve criteria vast te stellen waar het ene spraaksignaal ophoudt en het volgende begint, waaruit een inventaris van perceptieve segmenten resulteert, die in getal ruwweg overeenkomt met het aantal fonemen van de taal die aldus wordt geanalyseerd



(Nederlands). Dezelfde techniek wordt toegepast voor het verrichten van intonatie-(toonhoogte-)metingen.

Teneinde de hypothesen die op grond van de uit de analyse verkregen resultaten kunnen worden opgesteld, op hun bruikbaarheid te toetsen, is een elektronisch systeem ontworpen dat kunstmatige spraak kan voortbrengen: de IPOVOX. Het voorname kenmerk van dit apparaat is dat het woorden kan produceren in de vorm van een aanschakeling van discrete segmenten; daartoe is het uitgerust met een voorziening die de amplitudo van afzonderlijke segmenten precies kan dimensioneren. Deze tijdsfuncties van de amplitudo blijken proefondervindelijk evenveel informatie voor de luisteraar te bevatten als de mede in het spel zijnde frequenties, de zg. formanten.

De figuur op de vorige bladzijde toont een blok-schema van de synthese van het woord „phonetics” als een serie discrete segmenten. De spraakklanken *f*, *s*, *t* en *k* worden opgewekt door het filteren van ruis, verkregen uit een ruisgenerator. Een tweede bron, die periodieke impulsen teweeg brengt, wordt aangewend voor het verkrijgen van de overige spraakklanken. Deze klinkerachtige klanken verkrijgt men door een proces van selectief filteren, waarbij steeds twee frequentiegebieden (formanten) per klinker in het geding zijn. De vereiste amplitudo-omhullenden van de diverse segmenten worden verkregen door middel van elektronische poortschakelingen. In principe vormt het afvallen in amplitudo van het ene segment het sein voor het opkomen van het volgende segment.

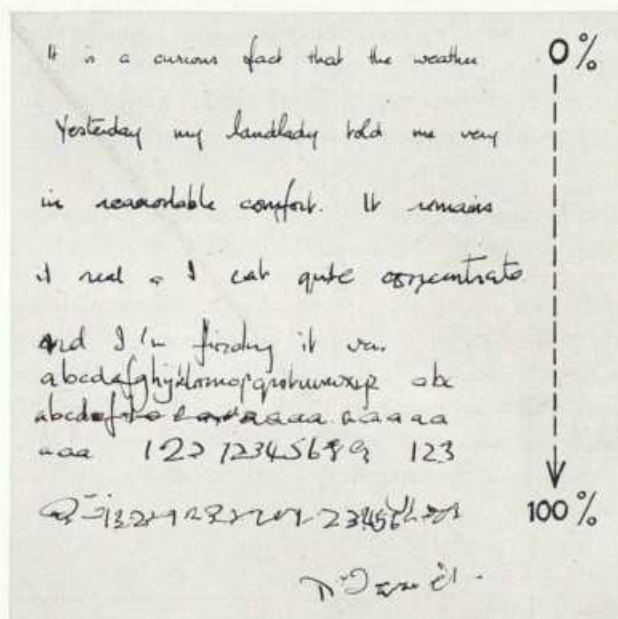
D8. Meting van perceptieve last en belasting, door H. W. Horeman en W. G. Koster.

De zwaarte van menselijke taken zoals die in de moderne industrie voorkomen, kan in vele gevallen niet worden gemeten in fysische energiemaat, aangezien de hoeveelheid energie, nodig voor de uitvoering van de taken, bijna verwaarloosbaar klein is. Het blijkt dat de meeste werkzaamheden vooral een belasting vormen voor de perceptieve en mentale capaciteiten en in veel mindere mate voor de fysieke mogelijkheden van de werker. Teneinde deze perceptieve last of belasting kwantitatief te meten, is

een methode ontwikkeld waarbij de proefpersoon twee taken gelijktijdig moet uitvoeren. Gemeten wordt hoeveel een proefpersoon nog kan presteren in een bepaalde taak, als een deel van zijn prestatiecapaciteit wordt opgeëist door de uitvoering van een standaardtaak. Uit de gemeten prestatie in die bepaalde taak kan een maat voor de perceptieve belasting worden afgeleid.

Resultaten van onderzoeken met behulp van deze dubbele-taaksituaties worden besproken.

De figuur laat stukken van een tekst zien die een proefpersoon spontaan heeft neergeschreven terwijl gelijktijdig gediscrimineerd moest worden tussen tonen met een hoge en lage frequentie. Duidelijk blijkt dat bij toenemende aanbiedingssnelheid van de tonen het handschrift meer en meer vervormt, terwijl de inhoud steeds banaler wordt.



In het kort wordt ingegaan op resultaten van proeven met de dubbele-taakmethode om de invloed van de verlichtingscondities op de werkprestatie te meten, alsook op het meten van de perceptieve last bij het chaufferen. In het laatste geval is gebruik gemaakt van een eenvoudige ritmische standaardtaak, waarbij de grootte van de onregelmatigheden in het ritme een maat vormt voor de belasting. De reden van deze keuze is de zeer geringe terugwerking van de standaardtaak op de prestatie in de te meten taak.